日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application:

2003年10月 6日

出 願 番 号 Application Number:

特願2003-347649

[ST. 10/C]:

[] P 2 0 0 3 - 3 4 7 6 4 9]

出 願 人
Applicant(s):

日本テクノ株式会社

1 0 JUN 2004 PCT

REC'D

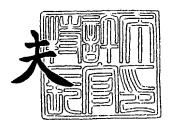
WIPO

ST AVAILABLE COP

PRIORITY DOCUMENT SUBMITTED OR TRANSMITTED IN COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office 2004年 5月28日





```
【書類名】
              特許願
【整理番号】
              HP003479-1
【提出日】
              平成15年10月 6日
【あて先】
              特許庁長官 今井 康夫 殿
【国際特許分類】
              H01M 8/06
              B01B 3/02
              C25B 1/04
【発明者】
  【住所又は居所】
              神奈川県藤沢市片瀬山5丁目28番11号
  【氏名】
              大政 龍晋
【発明者】
  【住所又は居所】
              東京都大田区石川町2-3-16-417
  【氏名】
              谷岡 明彦
【発明者】
  【住所又は居所】
              東京都港区高輪2-10-20
  【氏名】
              皆川 美江
【特許出願人】
  【識別番号】
              392026224
  【氏名又は名称】
              日本テクノ株式会社
【代理人】
  【識別番号】
              100094466
  【弁理士】
  【氏名又は名称】
              友松 英爾
  【電話番号】
              03-3226-4701
【選任した代理人】
  【識別番号】
              100116481
  【弁理士】
  【氏名又は名称】
              岡本 利郎
  【電話番号】
              03-3226-4701
【先の出願に基づく優先権主張】
  【出願番号】
              特願2003-114695
  【出願日】
              平成15年 4月18日
【手数料の表示】
  【予納台帳番号】
              007777
  【納付金額】
              21,000円
【提出物件の目録】
  【物件名】
              特許請求の範囲 1
  【物件名】
              明細書 1
  【物件名】
              図面 1
  【物件名】
              要約書 1
  【包括委任状番号】
               0013121
```

0013120

【包括委任状番号】

【書類名】特許請求の範囲

【請求項1】

H、 H_2 、 H_3 および/またはHD、OH、 1 6 Oおよび O_2 を含むことを特徴とする 水素系一酸素系混合ガス。 【請求項2】

H2:55~70モル%

H : 0. 12~0. 45モル%

H₃ および/またはHD: 0. 03~0. 14モル%

OH: 0. 3~1. 2モル%

1 6 O:1. 0~4. 2モル%

02:5~27モル%

を含むものである請求項1記載の水素系-酸素系混合ガス。

【請求項3】

前記水素系-酸素系混合ガスが

- (A) 電解液 (電解質を含む水) を電気分解するための電解槽、
- (B) 該電解槽内に収容される電解液と接するように配置される陽極部材 および陰極部材よりなる電極対と、前記陽極部材および陰極部材の間に 電圧を印加する電源とを含んでなる電気分解手段、
- (C) 前記電解槽に収容される電解液を振動流動撹拌するための振動撹拌

を用いて得られたものである請求項1または2記載の水素系-酸素系混合ガス。

請求項1~3いずれか記載の水素系-酸素系混合ガスよりなる燃料電池用燃料。 【請求項5】

請求項1~3いずれか記載の水素系-酸素系混合ガスからH2、H、H3および/また はHDならびにOHの少なくとも4成分を回収して得られた水素系ガス。 【請求項6】

前記水素系ガスが

- (A) 電解液を電気分解するための電解槽、
- (B) 該電解槽内に収容される電解液と接するように配置される陽極部材 および陰極部材よりなる電極対と、前記陽極部材および陰極部材の間に 電圧を印加する電源とを含んでなる電気分解手段、
- (C) 前記電解槽に収容される電解液を振動流動撹拌するための振動撹拌 手段、
- (D) 前記電解槽内に収容される電解液の前記電気分解手段による電気分解 で発生する水素系ガスを分離、捕集するための水素系ガス捕集手段、

を有する水素系ガス発生手段、

を用いて得られたものである請求項5記載の水素系ガス。

【請求項7】

請求項5または6記載の水素系ガスよりなる燃料電池用燃料。

【請求項8】

燃料極/中空層/空気極よりなる単セルまたはそれを積層したスタックよりなることを 特徴とする燃料電池。 【請求項9】

燃料極/電解質層または中空層/空気極よりなる単セルまたはそれを積層したスタック よりなる燃料電池であって、

- (A) 電解液を電気分解するための電解槽、
- (B) 該電解槽内に収容される電解液と接するように配置される陽極部材 および陰極部材よりなる電極対と、前記陽極部材および陰極部材の間に 電圧を印加する電源とを含んでなる電気分解手段、

- (C) 前記電解槽に収容される電解液を振動流動撹拌するための振動撹拌 手段、
- (D) 前記電解槽内に収容される電解液の前記電気分解手段による電気分解 で発生する水素系ガスを分離、捕集するための水素系ガス捕集手段、

を有する水素系ガス発生手段、

を用いて得られた水素系ガスを供給するための供給口を燃料極側に設け、かつ水素系ガス を供給される側の燃料極はガス透過性としたことを特徴とする燃料電池。

【請求項10】

燃料極/電解質層または中空層/空気極よりなる単セルまたはそれを積層したスタックよりなる燃料電池であって、

- (A)電解液を電気分解するための電解槽、
- (B) 該電解槽内に収容される電解液と接するように配置される陽極部材 および陰極部材よりなる電極対と、前記陽極部材および陰極部材の間に 電圧を印加する電源とを含んでなる電気分解手段、
- (C) 前記電解槽に収容される電解液を振動流動撹拌するための振動撹拌 手段、
- (D') 前記電解槽内に収容される電解液の前記電気分解手段による電気分解 で発生する水素系ガスおよび酸素系ガスを捕集するためのガス捕集手段、 を有する水素系-酸素系混合ガス発生手段、

を用いて得られた水素系-酸素系混合ガスを供給するための供給口を、燃料極側にまたは 燃料極側と空気極側の両方に、設け、かつ水素系-酸素系混合ガスを供給される側の極は ガス透過性としたことを特徴とする燃料電池。

【請求項11】

前記振動撹拌手段が、少なくとも1つの振動発生手段、前記振動発生手段に連結して振動する少なくとも1つの振動棒および前記振動棒に取付けられた少なくとも1つの振動羽根からなる振動撹拌部材とを含むものである請求項9または10記載の燃料電池。

【請求項12】

インバーターにより振動モーターを $10\sim500$ Hzの間の所望の振動を発生させ、この振動を振動応力分散手段を介して電解槽内の振動棒を一段または多段に固定した振動羽根を振幅 $0.01\sim30.0$ mm、振動数 $500\sim3000$ 回/分で振動させることにより電解液を流動撹拌しながら電気分解することにより得られた水素系ガスを燃料電池に供給することを特徴とする燃料電池を用いた発電方法。

【請求項13】

インバーターにより振動モーターを10~500Hzの間の所望の振動を発生させ、この振動を振動応力分散手段を介して電解槽内の振動棒を一段または多段に固定した振動羽根を振幅0.01~30.0mm、振動数500~3000回/分で振動させることにより電解液を流動撹拌しながら電気分解することにより得られた水素系一酸素系混合ガスを燃料電池に供給することを特徴とする燃料電池を用いた発電方法。

【請求項14】

インバーターにより振動モーターを10~500Hzの間の所望の振動を発生させ、この振動を振動応力分散手段を介して電解槽内の振動棒を一段または多段に固定した振動羽根を振幅0.01~30.0mm、振動数500~3000回/分で振動させることにより電解液を流動撹拌しながら電気分解することにより得られた水素系一酸素系混合ガスを、燃料極/電解質層または中空層/空気極よりなる単位セルまたはそれを積層したスタックにより構成された燃料電池のガス透過性燃料極側に、またはガス透過性燃料極とガス透過性空気極の両方に、燃料として供給して発電することを特徴とする燃料電池を用いた発電方法。

【請求項15】

前記水素系-酸素系混合ガスが請求項1~3いずれか記載の水素系-酸素系混合ガス発生手段を用いるものである請求項12~14いずれか記載の発電方法。

【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池用燃料、燃料電池およびそれを用いた発電方法

【技術分野】

[0001]

本発明は、振動撹拌手段を利用して得られた新規な水素系ー酸素系混合ガス、それよりなる燃料電池用燃料、それを用いた発電方法および燃料電池に関する。

【背景技術】

[0002]

従来、燃料電池による発電は水素を燃料極(通常はマイナス極である)に供給し、一方 酸素または空気を空気極(通常はプラス極である)に供給することにより行なわれている

[0003]

その理由は、燃料極には水素のみを供給しなければ

 $2 H_2 \rightarrow 4 H + 4 e^-$

の反応は進まず、また空気極に酸素または空気のような酸素含有ガスを供給しなければ、

 $O_2 + 4 H + 4 e \rightarrow 2 H_2 O$

の反応は起きないと考えられていたからである。

この技術に関連して特許文献1では、ブラウンガスを燃料電池の燃料として用いているが、この場合は、水素と酸素を分離するための分離器が必要であり、燃料ガスの原価を押上げる大きな要因になっていた。ところが、前記のような反応を考えると水素と酸素の分離は避けて通れないものと思うのは当然のことでもあった。

[0004]

ところが、前記水の電気分解工程において振動撹拌手段を用いて電解液を振動撹拌してやると水の電解効率が大幅に向上し、かつ、得られた水素ガスや酸素ガスが振動撹拌手段を用いないものと較べて異なっていることが判ってきた。すなわち、振動撹拌手段を利用して得られた水素ガスや酸素ガスには、図71にみられるようにH a やOHの存在を示す二次光のピークがみられるが、従来のブラウンガスにはこのようなピークの存在は認められない。そして、理由は未だ充分解明されていないが、このような相違点が本発明の振動撹拌手段を利用して得られた水素ガスまたは水素一酸素混合ガスを燃料電池の燃料として用いると、今までの燃料電池では得られなかった高度の発電効率を示すことが判ってきた

[0005]

さらに今までの燃料電池においては、燃料電池内に電解質層を設けることが不可欠であり、燃料電池のタイプにより電解質層を形成する電解質の種類が決まっていた。例えば、アルカリ水溶液型燃料電池における電解質は水酸化カリウム、酸水溶液型燃料電池における電解質はりん酸、溶融炭酸塩型燃料電池における電解質は炭酸リチウムまたは炭酸カリウム、固体酸化物燃料電池における電解質は安定化ジルコニア、固体高分子型燃料電池における電解質はイオン交換膜というように、電解質層の使用は不可欠であり、このため、電池の小型化や低価格の足かせになっていたのが実情である。

[0006]

【特許文献1】特開2002-348694号公報

【発明の開示】

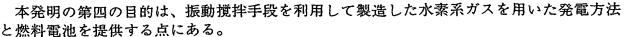
【発明が解決しようとする課題】

[0007]

本発明の第一の目的は、新規な水素系一酸素系混合ガスまたは水素系ガスおよびそれよりなる燃料電池用燃料を提供する点にある。

本発明の第二の目的は、新規な水素系-酸素系混合ガスまたは水素系ガスよりなる燃料 電池用燃料に関する。

本発明の第三の目的は、電解質層を有さない新規な燃料電池の構造を提供する点にある



本発明の第五の目的は、燃料電池の燃料として水素と酸素とをわざわざ分離して使用しないで、水素系-酸素系混合ガスのままで燃料極に供給して、あるいは燃料極と空気極の両方に供給して発電を行う発電方法と燃料電池を提供する点にある。

本発明の第六の目的は、従来の水素ガスを燃料とした従来の燃料電池に比べてはるかに高い電力を発生させる発電方法と燃料電池を提供する点にある。

本発明の第七の目的は、電解質層を設けない燃料電池を提供する点にある。

【課題を解決するための手段】

[0008]

本発明の第1は、H、H2、H3 および/またはHD、OH、 1 6 OおよびO2 を含むことを特徴とする水素系-酸素系混合ガスに関する。

本発明の第2は、

H2:55~70モル%

H: 0.12~0.45モル%

H3 および/またはHD: 0. 03~0. 14モル%

OH: 0.3~1.2モル%

1 6 O:1. 0~4. 2モル%

O2:5~27モル%

を含むものである請求項1記載の水素系-酸素系混合ガスに関する。

本発明の第3は、前記水素系-酸素系混合ガスが

- (A) 電解液 (電解質を含む水) を電気分解するための電解槽、
- (B) 該電解槽内に収容される電解液と接するように配置される陽極部材 および陰極部材よりなる電極対と、前記陽極部材および陰極部材の間に 電圧を印加する電源とを含んでなる電気分解手段、
- (C) 前記電解槽に収容される電解液を振動流動撹拌するための振動撹拌 手段、

を用いて得られたものである請求項1または2記載の水素系-酸素系混合ガスに関する。 本発明の第4は、請求項1~3いずれか記載の水素系-酸素系混合ガスよりなる燃料電 池用燃料に関する。

本発明の第5は、請求項1の水素系-酸素系混合ガスからH2、H、H3 および/またはHDならびにOHの少なくとも4成分を回収して得られた水素系ガス。

本発明の第6は、前記水素系ガスが

- (A) 電解液を電気分解するための電解槽、
- (B) 該電解槽内に収容される電解液と接するように配置される陽極部材 および陰極部材よりなる電極対と、前記陽極部材および陰極部材の間に 電圧を印加する電源とを含んでなる電気分解手段、
- (C) 前記電解槽に収容される電解液を振動流動撹拌するための振動撹拌 手段、
- (D) 前記電解槽内に収容される電解液の前記電気分解手段による電気分解 で発生する水素系ガスを分離、捕集するための水素系ガス捕集手段、

を有する水素系ガス発生手段、

を用いて得られたものである請求項5記載の水素系ガスに関する。

本発明の第7は、請求項5または6記載の水素系ガスよりなる燃料電池用燃料に関する

・ 本発明の第8は、燃料極/中空層/空気極よりなる単セルまたはそれを積層したスタッ クよりなることを特徴とする燃料電池に関する。

本発明の第9は、燃料極/電解質層または中空層/空気極よりなる単セルまたはそれを 積層したスタックよりなる燃料電池であって、

(A) 電解液を電気分解するための電解槽、

- (B) 該電解槽内に収容される電解液と接するように配置される陽極部材 および陰極部材よりなる電極対と、前記陽極部材および陰極部材の間に 電圧を印加する電源とを含んでなる電気分解手段、
- (C) 前記電解槽に収容される電解液を振動流動撹拌するための振動撹拌 手段、
- (D) 前記電解槽内に収容される電解液の前記電気分解手段による電気分解 で発生する水素系ガスを分離、捕集するための水素系ガス捕集手段、 を有する水素系ガス発生手段、

を用いて得られた水素系ガスを供給するための供給口を燃料極側に設け、かつ水素系ガス を供給される側の燃料極はガス透過性としたことを特徴とする燃料電池に関する。

本発明の第10は、燃料極/電解質層または中空層/空気極よりなる単セルまたはそれ を積層したスタックよりなる燃料電池であって、

- (A) 電解液を電気分解するための電解槽、
- (B) 該電解槽内に収容される電解液と接するように配置される陽極部材 および陰極部材よりなる電極対と、前記陽極部材および陰極部材の間に 電圧を印加する電源とを含んでなる電気分解手段、
- (C) 前記電解槽に収容される電解液を振動流動撹拌するための振動撹拌 手段、
- (D´) 前記電解槽内に収容される電解液の前記電気分解手段による電気分解 で発生する水素系ガスおよび酸素系ガスを捕集するためのガス捕集手段、 を有する水素系-酸素系混合ガス発生手段、

を用いて得られた水素系-酸素系混合ガスを供給するための供給口を、燃料極側にまたは 燃料極側と空気極側の両方に、設け、かつ水素系-酸素系混合ガスを供給される側の極は ガス透過性としたことを特徴とする燃料電池に関する。

本発明の第11は、前記振動撹拌手段が、少なくとも1つの振動発生手段、前記振動発 生手段に連結して振動する少なくとも1つの振動棒および前記振動棒に取付けられた少な くとも1つの振動羽根からなる振動撹拌部材とを含むものである請求項9または10記載 の燃料電池に関する。

本発明の第12は、インバーターにより振動モーターを10~500Hzの間の所望の 振動を発生させ、この振動を振動応力分散手段を介して電解槽内の振動棒を一段または多 段に固定した振動羽根を振幅0.01~30.0mm、振動数500~3000回/分 で振動させることにより電解液を流動撹拌しながら電気分解することにより得られた水素 系ガスを燃料電池に供給することを特徴とする燃料電池を用いた発電方法に関する。

本発明の第13は、インバーターにより振動モーターを10~500Hzの間の所望の 振動を発生させ、この振動を振動応力分散手段を介して電解槽内の振動棒を一段または多 段に固定した振動羽根を振幅0.01~30.0mm、振動数500~3000回/分 で振動させることにより電解液を流動撹拌しながら電気分解することにより得られた水素 系-酸素系混合ガスを燃料電池に供給することを特徴とする燃料電池を用いた発電方法に

本発明の第14は、インバーターにより振動モーターを10~500Hzの間の所望の 振動を発生させ、この振動を振動応力分散手段を介して電解槽内の振動棒を一段または多 段に固定した振動羽根を振幅0.01~30.0mm、振動数500~3000回/分 で振動させることにより電解液を流動撹拌しながら電気分解することにより得られた水素 系-酸素系混合ガスを、燃料極/電解質層または中空層/空気極よりなる単位セルまたは それを積層したスタックにより構成された燃料電池のガス透過性燃料極側に、またはガス 透過性燃料極とガス透過性空気極の両方に、燃料として供給して発電することを特徴とす る燃料電池を用いた発電方法に関する。

本発明の第15は、前記水素系-酸素系混合ガスが請求項1~3いずれか記載の水素系 -酸素系混合ガス発生手段を用いるものである請求項12~14いずれか記載の発電方法 に関する。



本発明で規定している振動撹拌手段を用いることにより得られる水素系-酸素系混合ガスは、従来のこの種のガス中には原子状のOH、いいかえれば活性なOHや原子状水素の存在は全く確認できないのに対し、本発明に用いる水素系-酸素系混合ガスあるいは水素系ガス中には驚くべきことにOHと原子状水素が存在することが火炎の輝度スペクトルを測定する(火口から15mmの個所で測定した場合も20mmの個所で測定した場合も、同一波長のところでピークがみられた)ことにより確認されている。ちなみに約620mmにOHの存在を示すピークが、約630mmに原子状水素の存在を示すピークが認められた。

しかも、この〇Hと原子状水素の存在確認は、本発明の振動撹拌手段を用いて発生した水素系-酸素系混合ガスを直ちに測定した場合と水素系-酸素系混合ガスをガス溜めに12時間程度溜めてあったガスを測定した結果はほぼ同様であった。したがって、製造により得られたガス中に〇Hや原子状水素がある瞬間のみ存在していたというわけではないのである。そして、これが水素系-酸素系混合ガスの燃焼にさいし、高温を発生する要因であると考えられる。

[0010]

本発明者らは、振動撹拌手段を利用した水の電気分解により得られたガス(本明細書では、このガスを水素系一酸素系混合ガスと称している)を電子科学株式会社製、商品名E MD-D5SKという質量分析計(二重収束質量分析計)を用い、下記の条件により分析した。

イオン加速電圧:1200V イオン化方式 :電圧衝撃型

分解能:500イオン飛行距離:26cm真空度:5×10⁻⁷

フルスケール :5 V

[0011]

この分析に供した水素系-酸素系混合ガスは、振動撹拌手段を設けた電解槽から発生したガスを図72のガス溜めに貯蔵し、1つは図72のシールポットを通して得られた処理ガスであり、他の1つは、前記シールポットを通さないで得られた生ガスである。前記シールポットはガスを着色して取扱い上便利にしたものであり、シールポット内にはメタノール30%と水70%よりなるアルコール水溶液が充填されており、シールポットに生ガスを供給すると、生ガスは前記メタノール水溶液中を泡状になって通過したものである。そのため得られた処理ガスの成分は微妙に生ガスのデータと異なっている。

生データの一部を図78~79に示す。図から求めた組成を以下の表に示す。とくに処理ガスは生ガスをメタノール中に吹きこんで処理しているので、処理ガスは生ガスの構成成分のほかに、メタノールに基因すると思われる質量の高い成分が含まれている。いずれにしてもこの表から従来ガスに較べ本発明のガスはH、H3および/またはHD、OHおよび¹⁶Oをも含有している点に大きな特徴があることが分る。

図 $78\sim79$ のものは、いずれも真空度 5×10^{-7} 、フルスケール5Vで測定したものである。

ただし、図 $78\sim79$ の高さは、すべて同一の条件に測定した結果を示すものではなく、図の最下段に示すGAIN(1)の個所は実際の高さの1060倍の高さであり、GAIN(2)の個所は実際の高さの1060倍の高さであり、GAIN(3)の高さは実際の高さと同一である。

図中、最下段のGAINの項目における数字は、下記式の関係にある

GAIN (1) = GAIN (2) \times 10 = GAIN (3) \times 10²

すなわちGAIN (1) の縦軸の高さは、実際にはGAIN (2) の縦軸の高さの1/10の高さであり、またGAIN (3) の縦軸の高さの1/100の高さであることを示

している。

いいかえれば、基本のピーク強さはGAIN(3)の高さで示したものであるが、GA IN(1)やGAIN(2)に対応する部分はそのガス成分量が少なすぎてピークが低す ぎるため、GAIN(1)はGAIN(3)の100倍の高さになるよう増幅して測定し たものGAIN(2)はGAIN(3)の10倍の高さになるよう増幅して測定したもの

【表1】

ガス成分	シールポットを通さないで得られた 水素系-酸素系混合がス(生がス) モル%			シールホットを通して得られた 水素系-酸素系混合がス(処理がス) モルタ		
	Α	В	С	(a)		
H ₂	60	55	57	58	(b)	(c)
H	0. 2	0. 28	0. 42		54	55
H ₃ および/またはHD	0. 05	0. 07		0. 2	0. 2	0. 42
OH	0. 8	0. 9	0. 04	0. 05	0. 045	0. 03
¹⁶ O	2. 5		0. 35	0. 9	0. 9	0. 3
H ₂ O	3. 0	3. 5	1. 6	3. 9	3. 9	1. 4
N ₂ /CO		3. 5	1. 3	3. 3	3. 3	0. 8
	2. 8	4. 8	0. 7	6. 7	6. 7	
O ₂	18	21	6. 8	23	 	1. 0
CO2	0. 12	0. 12	0. 02		23	5. 8
有機物			5. 02	0. 13	0. 13	0. 08
A,(a), B, (b)	\ . ず / #4 sto RF	11-1-1-1				2. 0

A , (a), B , (b) :ゴム性容器に採取 、測定時真空度 8×10⁻⁷torr

A,(a): ガス採取後O. 5時間目で測定

B,(b): ガス採取後24時間目で測定

C_.(c):ガスバリアー用容器に採取、測定時真空度 5×10⁻⁷torr

ガス採取後1時間目で測定

[0012]

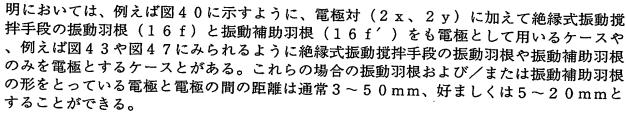
請求項8の燃料電池における中空層とは、燃料極と空気極の間がショートしないように するためにのみ必要である。しかし、従来の水素ガスを燃料とした燃料電池においては、 燃料(水素ガス)を透過させる膜を用いてプロトンと酸素を化学反応させるために電解質 層は不可欠であった。本請求項8の燃料電池は電解質層が不要である点が大きな特徴であ る。なお、その他の点は、従来の燃料電池の構成、材料がすべて転用できる。

このため、請求項8の燃料電池は、セルの構造が簡素化され、電解質層のメンテナンス が不要になるという大きなメリットがある。

なお、請求項8における中空層は、本当の中空層であってもよいし、繊維層やガス透過 性セラミック層のようにガスが流通できる機能を有する層であってもよい。 [0013]

電解槽内に設けられる陽極部材と陰極部材は、通常いずれも電極板であることが好まし い。この場合、振動撹拌手段を用いない従来技術においては電極の間隔を最短でも50m m程度の間隔を必要としていた。この程度以上の間隔を設けないと、過電流となり事故が 発生するおそれがあったからである。ところが、本発明では振動撹拌手段を用いることに より電極間距離を1~20mmといった程度まで接近させることができ、これにより電流 効率を大幅に向上させることができた。なお、これ以上接近させると過電流となりショー トを生じる。本発明では実用的には電極間距離を5~400mmとすることが好ましい。 なお、詳細は同一人の出願にかかるWO03/059534A1に詳述されている。

本発明においては、絶縁式振動撹拌手段を用いて、振動羽根や振動補助羽根を電極とし ても機能させる場合がある。その例は、図33、図38~55に示すとおりである。本発



[0015]

本発明においては、水素系-酸素系混合ガスを製造するための前記電解液として5~5 0重量%、好ましくは5~30重量%の電解質を含む水溶液で液温20~100℃、好ま しくは20~90℃でpH7~10のものを用いて、電流密度5~100A/dm² 、好 ましくは $5\sim5$ 0 A / d m^2 となるように前記電解液の電気分解を行うことにより水素系 一酸素系混合ガスを発生させる。

[0016]

前記電解質としては、水溶性のアルカリ金属水酸化物、アルカリ土類金属酸化物、第4 級アルキルアンモニウム、あるいは硫酸、リン酸などの無機酸、有機酸などを挙げること ができる。

[0017]

本発明で使用する水は、蒸留水が好ましいが、井戸水、工業用水、水道水、河川水、池 の水なども使用できる。

[0018]

本発明の振動撹拌手段の基本的態様は、少なくとも1つの振動発生手段と、該振動発生 手段に連係して前記電解槽内で振動する少なくとも1つの振動棒及び該振動棒に取り付け られた少なくとも1つの振動羽根からなる振動撹拌部材とからなる振動撹拌手段である。

[0019]

また、本発明の振動撹拌手段の他の基本的態様は、少なくとも1つの振動発生手段と、 該振動発生手段に連係した前記電解槽内で振動する少なくとも1つの振動棒、該振動棒に 取り付けられた少なくとも1つの振動羽根及び前記振動棒と前記振動発生手段との連結部 に又は前記振動棒の振動羽根を取り付けた部分より前記連結部に近い部分に設けられた電 気的絶縁領域からなる絶縁式振動撹拌部材とからなる絶縁式振動撹拌手段である。そして 、本発明における撹拌手段としては絶縁式振動撹拌手段が好ましい。

[0020]

絶縁式振動撹拌手段における絶縁式振動撹拌部材の振動棒には、振動羽根に加えて通電 線と電気的に接続された電極用補助羽根を取り付けることができる。また電極用補助羽根 は前記振動羽根と交互に位置するように振動棒に取り付けられていることが好ましい。さ らに電極用補助羽根は振動羽根より大きな面積を持ち且つ振動羽根の先端部よりも更に突 出していることが好ましい。

[0021]

振動撹拌手段または絶縁式振動撹拌手段の発生手段は振動モータを含み、振動撹拌手段 は振動モータを10Hz~500Hz、好ましくは10Hz~200Hz、とくに好まし くは20Hz~60Hzの振動数で振動させるよう制御するためのインバータと併用する ことが好ましい。

[0022]

前記絶縁式振動撹拌手段における振動棒の電気的絶縁領域より振動羽根側の位置に通電 線を接続することにより、振動羽根や振動補助羽根を電解のための電極、すなわち陽極部 材または陰極部材として使用することができる。

この場合、例えば図50に示すように、振動羽根は、液を振動撹拌させる機能と電極と しての機能を兼務するが、振動補助羽根は、液を振動撹拌する機能はほとんどあるいは全 くもたず、もっぱら電極として機能する。

[0023]

絶縁式振動撹拌手段は、例えば図52における電極対と併用することもできるが、絶縁 出証特2004-3045728

7/

式振動撹拌手段をもって前記電極対の代役をさせることもできる。この場合、図47に示すように、1つの絶縁式振動撹拌手段を陽極として利用し、他の1つの絶縁式撹拌手段を 陰極として利用することもできる。また、一台の絶縁式振動撹拌手段であっても、例えば 図48に示すように、振動棒を二本有するタイプのものであれば、一方の振動棒側を陽極 とし、他方の振動棒側を陰極として使用することもできる。

[0024]

以上の様な本発明においては、振動撹拌手段の振動羽根により電解液中強力な振動流動が生ぜしめられるので、電解液は電極と十分良好な均一性をもって且つ十分な供給量をもって接触せしめられる。このため、陽極と陰極との間の距離を従来より著しく小さくしても、それらの間に電気分解に必要なイオンを十分に供給することが可能になり、また電極に発生する電解熱を迅速に放熱することができる。従って、高い電流密度で電気分解を行なって、高い効率で水素系一酸素系混合ガスを製造することができる。また、以上のように陽極と陰極との間の距離を小さくすることで、単位容積あたりに配置される電極の有効表面積を十分に高めることができるので、小型化しても十分な量の水素系一酸素系混合ガスを製造させることができる。

特に、以上の様な振動撹拌手段による電解液の振動撹拌を併用して電気分解を行う場合には、電極で発生する原子状水素や原子状酸素が電極間で気泡を形成せず、液中に分散するので、電解液中にて生成せしめられた水素や酸素が電極表面に気泡として付着し電気抵抗を増加させるようなことがない。このため、上記の様に容易に高い電流密度での電気分解の実現が可能となり、水素系一酸素系混合ガスを従来法より多量に発生させることができる。

[0025]

以下、図面を参照しながら本発明の具体的な実施の形態を説明する。尚、図面において 、同様な機能を有する部材又は部分には同一の符号が付されている。

[0026]

図1〜図6は本発明による水素系-酸素系混合ガス発生方法の実施される水素系-酸素 系混合ガス発生手段の一具体例の構成を示す図である。ここで、図1、図4は断面図であ り、図2、図5は平面図であり、図3は側面図で、図6は断面図である。

これらの図において、10Aは電解槽であり、該電解槽には電解液14が収容されている。16は振動撹拌手段である。該振動撹拌手段16は、電解槽10Aとは別に配置された支持台100に防振ゴムを介して取り付けられた基台16a、該基台に下端を固定された振動吸収部材としてのコイルバネ16b、該コイルバネの上端に固定された振動部材16c、該振動部材に取り付けられた振動モータ16d、振動部材16cに上端を取り付けられた振動棒(振動伝達ロッド)16e、該振動棒の下半部において電解液14に浸漬する位置に回転不能に複数段に取り付けられた振動羽根16fを有する。振動モータ16d及び振動部材16cを含んで振動発生手段が構成され、該振動発生手段が振動棒16eと連係している。また、振動棒16e及び振動羽根16fを含んで振動撹拌部材が構成され、該振動撹拌部材と上記振動発生部材とを含んで振動撹拌手段が構成されている。コイルバネ16b内には、後述の図16その他に示されているように、棒状のガイド部材を配置することができる。

[0027]

尚、振動撹拌手段における振動発生手段としては、振動発生源として一般の機械式振動 モータを用いたもの以外にマグネット振動モータやエアー振動モータ等を用いたものを使 用することも可能である。

[0028]

振動モータ16 dは例えばインバータを用いた制御により例えば10~500Hz、好ましくは10~200Hz、更に好ましくは10~120Hz、とくに好ましくは20~60Hzで振動する。振動モータ16 dで発生した振動は、振動部材16 c及び振動棒16 eを介して振動羽根16 fに伝達される。振動羽根16 fは、電解液14中で所要の振動数で先端縁が振動する。この振動は、振動羽根16 fが振動棒16 eへの取り付け部分

8/

から先端縁へと「しなる」ように発生する。この振動の振幅及び振動数は、振動モータ16 dのものとは異なるが、振動伝達経路の力学的特性及び電解液14との相互作用の特性などに応じて決まり、本発明では、通常、振幅 $0.01\sim30\,\mathrm{mm}$ 、好ましくは $0.1\sim10\,\mathrm{mm}$ で、振動数 $600\sim30000$ 、好ましくは $600\sim12000$ 回/分、更に好ましくは $600\sim72000$ 回/分、特に好ましくは $1200\sim36000$ 回/分である。

[0029]

図11は振動部材16cへの振動棒16eの取り付け部111の拡大断面図である。振動棒16eの上端に形成されたオネジ部に、振動部材16cの上側から振動応力分散部材16g及びワッシャ16hを介してナット16iを適合させており、振動部材16cの下側から振動応力分散部材16gを介してナット16iを適合させている。振動応力分散部材16gは、振動応力分散手段として用いられており、例えばゴムからなる。振動応力分散部材16gは、例えば硬い天然ゴム、硬い合成ゴム、合成樹脂等のショアーA硬度80~120、好ましくは90~100の硬質弾性体により構成することができる。とくに、ショアーA硬度90~100の硬質ウレタンゴムが耐久性、耐薬品性の点で好ましい。振動応力分散手段を使用することにより、振動部材16cと振動棒16eとの接合部分の近辺への振動応力の集中が防止され、振動棒16eが折れにくくなる。とくに、振動モータ16dの振動周波数を150Hz以上に高くした場合や液が高粘度の場合には、振動棒16eの折れ発生防止の効果は顕著である。

[0030]

図12は振動部材16cへの振動棒16eの取り付け部111の変形例を示す拡大断面 図である。この変形例は、図11の取り付け部とは、振動部材16cの上側に振動応力分 散部材16gを配置しないこと、及び振動部材16cと振動応力分散部材16gとの間に 球面スペーサ16xを介在させたことが異なるのみであり、他は同様である。

[0031]

図13は振動棒16eへの振動羽根16fの取り付け部の拡大断面図である。振動羽根 1 6 f の各々の上下両側には、振動羽根固定部材 1 6 j が配置されている。隣接する振動 羽根16fどうしの間には固定部材16jを介して振動羽根16fの間隔設定のためのス ペーサリング16kが配置されている。尚、最上部の振動羽根16fの上側及び最下部の 振動羽根16fの下側には、図1や図4に示されているように、スペーサリング16kを 介して又は介することなく、振動棒16eに形成されたオネジに適合するナット16mが 配置されている。図13に示されているように、各振動羽根16fと固定部材16jとの 間にフッ素系樹脂やフッ素系ゴムなどからなる振動応力分散手段としての弾性部材シート 16pを介在させることで、振動羽根16fの破損を防止することができる。弾性部材シ ート16pは、振動羽根16fの破損防止効果を一層高めるために、固定部材16jから 若干はみ出すように配置するのが好ましい。図示されているように、上側の固定部材16 j の下面(押圧面)は凸状面とされており、下側の固定部材 1 6 j の上面(押圧面)は対 応する凹状面とされている。これにより、固定部材16jにより上下方向から押圧される 振動羽根16fの部分は湾曲せしめられ、振動羽根16fの先端部は水平面に対して角度 α をなしている。この角度 α は、例えば -30° 以上 30° 以下好ましくは -20° 以上 20°以下とすることができる。特に、角度αは、-30°以上-5°以下または5°以 上30°以下、好ましくはー20°以上-10°以下または10°以上20°以下とする のが好ましい。固定部材 1 6 j の押圧面を平面とした場合には、角度 α は 0° である。角 度αは、全ての振動羽根16 fについて同一である必要はなく、例えば、下方の1~2枚 の振動羽根16fについては一の値(即ち下向き:図13に示される向き)とし、それ以 外の振動羽根16fについては+の値(即ち上向き:図13に示されるものと逆の向き) とすることができる。振動羽根を下向きにつけると、電解により発生する活性ガスが上部 に逃げにくくなり、液中への溶存、溶解に有効であり、好ましい。

[0032]

振動羽根16fとしては、弾力性のある金属板、合成樹脂板またはゴム板などを用いることができる。振動羽根16fの厚みは、振動条件や電解液14の粘度などにより好まし

い範囲は異なるが、振動撹拌手段16の作動時に、振動羽根が折れることなく、振動撹拌の効率を高めるように振動羽根16fの先端部分が"フラッター現象"(波打つような状態)を呈するように設定される。振動羽根16fがステンレス鋼板などの金属板からなる場合には、その厚みは0.2~2mmとすることができる。また、振動羽根16fが合成樹脂板やゴム板からなる場合には、その厚みは0.5~10mmとすることができる。振動羽根16fと固定部材16jとを一体成形したものを使用することもできる。この場合は、振動羽根16fと固定部材16jとの接合部に電解液14が浸入し固形分が固着して洗浄に手間がかかるというような問題を回避することができる。

[0033]

金属製の振動羽根16fの材質としては、チタン、アルミニウム、銅、鉄鋼、ステンレス鋼、磁性鋼などの磁性金属、これらの合金が挙げられる。合成樹脂製の振動羽根16fの材質としては、ポリカーボネート、塩化ビニル系樹脂、ポリプロピレンなどが挙げられる。振動羽根は、プラスチック部材の表面にめっきなどにより導電処理を施したものであってもよい。

[0034]

電解液 14内での振動羽根 16 f の振動に伴って発生する振動羽根の"フラッター現象"の程度は、振動モータ 16 d の振動の周波数、振動羽根 16 f の長さ(固定部材 16 j の先端縁から振動羽根 16 f の先端縁までの寸法:図 36 の D_2)と厚み、及び電解液 14 の粘度や比重などによって変化する。与えられた周波数においてもっともよく"しなる "振動羽根 16 f の長さと厚みとを選択することができる。振動モータ 16 d の振動の周波数と振動羽根 16 f の厚みとを一定にして、振動羽根 16 f の長さを変化させてゆくと、振動羽根のしなりの程度は図 14 に示すようになる。即ち、長さmが大きくなるに従って、ある段階までは大きくなるが、それをすぎるとしなりの程度 14 に、ある段階までは大きくなるが、それをすぎるとしなりの程度 14 に、ある段階までは大きくなりがなくなり、さらに振動羽根を長くするとまたしなりが大きくなるという関係をくりかえすことが判った。

[0035]

振動羽根の長さは、第1回目のピークを示す長さ L_1 か、第2回目のピークを示す長さ L_2 を選択することが好ましい。 L_1 にするか L_2 にするかは、系の振動を強くするか流動を強くするかに応じて適宜選択できる。

振動周波数 $3.7 \sim 6.0 \, Hz$ 、 $7.5 \, k$ Wの振動モータでステンレススチール(SUS304)製の振動羽根の種々の厚みのものについて、 L_1 及び L_2 を求めたところ、以下のような結果が得られた。

厚み	L_1	L 2
0.10mm	約15mm	
0.20mm	約25mm	約70mm
0.30mm	約45mm	$1 \ 1 \ 0 \sim 1 \ 2 \ 0 \ mm$
0. 40 mm	約50mm	$140 \sim 150 \mathrm{mm}$
0 50mm	約55mm	約170mm

[0036]

以上のような振動撹拌手段16としては、以下の文献(これらは本発明者の発明に係る特許出願に関するものである)及び本出願人による特許出願である特願2001-135528、特願2001-338422に記載されているような振動撹拌機(振動撹拌装置)を使用することが可能である:

特開平3-275130号公報(特許第1941498号)、特開平6-220697号公報(特許第2707530号)、特開平6-312124号公報(特許第2762388号)、特開平8-281272号公報(特許第276771号)、特開平8-173785号公報(特許第2852878号)、

特開平7-126896号公報(特許第2911350号)、 特開平9-40482号公報(特許第2911393号)、 特開平11-189880号公報(特許第2988624号)、 特開平7-54192号公報(特許第2989440号)、 特開平6-330395号公報(特許第2992177号)、 特開平6-287799号公報(特許第3035114号)、 特開平6-280035号公報(特許第3244334号)、 特開平6-304461号公報(特許第3142417号)、 特開平10-43569号公報(特許第3320984号)、 特開平10-309453号公報、 特開平11-253782号公報、 特開2000-28293号公報(特許第3046594号)、 特開2000-317295号公報 特開2002-053999号公報 特開2002-121699号公報 特開2002-146597号公報 WO 02/090621A1 WO 03/048424A1. [0037]

本発明において、振動撹拌手段16は、図1や図4に示されている様に、電解槽の両端 部に配置しても良いが、一方の端部のみに配置しても良い。また、振動羽根として両側に 対称的に延びているものを使用すれば、振動撹拌手段16を電解槽の中央に配置し、その 両側に後述の様な電極群を配置することも可能である。 [0038]

なお、本発明において、特開平6-304461号公報に記載されている様な振動羽根 が電解槽の底部に存在するタイプの振動撹拌手段を用いることにより、電解槽内の電極群 の配置スペースが広くなり、電解槽の容積あたりのガス発生量を高めることができるとと もに、上下方向に沿って電極を配置する場合には電極として後述の多孔性のものを使用す る必要がなくなるという利点がある。 [0039]

再び図1〜図6を参照する。本発明における水素系ー酸素系混合ガス発生手段の具体例 では、電解槽10Aの両端部にそれぞれ上記の様な振動撹拌手段16が配置されている。 電解槽10Aの中央部には、電極対は構成する板状の陽極部材2x及び板状の陰極部材2 yが互いに平行に配置されている。一方の振動撹拌手段16は陽極部材2xの表面(主面)と対向するように配置されており、他方の振動撹拌手段16は陰極部材2yの表面(主 面)と対向するように配置されている。 [0040]

陽極部材2x及び陰極部材2yの材料としては、通常の水の電気分解に使用されるもの を使用することができる。たとえば、陽極部材として二酸化鉛、マグネタイト、フェライ ト、黒鉛、白金、PtーIr合金、チタン合金、貴金属被覆チタン(例えば白金被覆チタ ン)などが例示でき、陰極部材としてロジウム、ニッケル、ニッケル合金(Ni-Mo2 、Ni-Co、Ni-Fe、Ni-Mo-Cd、Ni-Sx 、ラネーニッケル等)、チタ ン合金等の貴金属が例示できる。陽極と陰極との間の距離は、例えば5mm~400mm [0041]

陽極部材2x及び陰極部材2yは板状体であるから、これを多孔性のものとすることで 、図1や図4に示すように、振動撹拌手段16の振動羽根16fによる振動撹拌で発生せ しめられる電解液14の流動を遮るように振動羽根16 f を向いた方向に対してほぼ直角 に設けられる場合にも、小孔を通って電解液14がスムースに流動することができる。小 孔の形状は円形状でも多角形状でもよく、特に制限はない。また、小孔の大きさや数は電

極本来の目的と多孔性にする目的との双方のバランスを考えて、適宜設定するのが好ましい。電極における小孔の面積割合は、有効面積(即ち電解液 1 4 と接触する面積)で、電極面積が 5 0 %以上となる様にするのが好ましい。多孔性電極は網状または籠状であっても良い。

[0042]

陽極部材 $2 \times Q$ び陰極部材2 yは、それぞれ不図示の陽極主ブスバー及び陰極主ブスバーに接続されており、これら陽極主ブスバー及び陰極主ブスバーは図1や図4に示されている電源34に接続されている。該電源34と陽極部材 $2 \times Q$ び陰極部材2 yとを含んで電気分解手段が構成される。

[0043]

電極を一定の間隔で多数枚を電解槽内にセットするためには、絶縁体枠/電極/絶縁体枠/……電極/絶縁体枠という形で電極群を組み立てることが好ましい。図8Aにその基本的組合せである絶縁体枠70と電極71の組合せ態様を示す、図9Aは、図8に用いた絶縁体枠の平面図であり、図9Bは電極の平面図であり、図8Bは図8Aの絶縁体枠70の後に図9Bの電極を重ねたときの平面図である。電極は板状体であるから、例えば図1や図2に示すように振動撹拌手段の作用をさえぎるように振動撹拌手段の方向に対して直角に電極板を設ける場合には電極板を多孔質のものとする必要がある。一方方向に電極板を設ければ電極板を多孔質にする必要は必ずしもないが、電極間隔を詰めるのに限界が生じる。前記絶縁体枠を形成している絶縁体としては、天然ゴム、合成ゴム、合成樹脂などを用いることができる。

[0044]

電源34は、直流を発生するものであればよく、通常の平滑な直流でもよいが、その他の種々の波形の電流を使用することができる。この様な電解電流の波形は、例えば、「電気化学」第24巻398~403頁、同449~456頁、1996年4月15日全国鍍金材料組合連合会発行、「めっき技術ガイド」378~385頁、昭和58年6月15日(株)広信社発行「表面技術総覧」301~302頁、同517~527頁、同1050~1053頁、昭和46年7月25日日刊工業新聞社発行「めっき技術便覧」365~369頁、同618~622頁等に記載されている。

[0045]

本発明では、とりわけ、エネルギー効率の向上の観点から、パルス波形のうちの矩形波パルス波形のものを使用することが好ましい。この様な電源(電源装置)は、交流電圧から矩形波状電圧を作成することができるものであり、このような電源は例えばトランジスタを用いた整流回路を有するものであり、パルス電源装置として知られている。このような電源装置または整流器としては、トランジスタ調整式電源、ドロッパー方式の電源、スイッチング電源、シリコン整流器、SCR型整流器、高周波型整流器、インバータデジタル制御方式の整流器 [例えば (株) 中央製作所製のPower Master]、(株)三社電機製作所製のKTSシリーズ、四国電機株式会社製のRCV電源、スイッチングレギュレータ式電源とトランジスタスイッチとからなりトランジスタスイッチがONーOF下することで矩形波状のパルス電流を供給するもの、高周波スイッチング電源(交流をダイオードにて直流に変換した後にパワートランドスタで20~30KHzの高周波をトランスに加えて再度整流、平滑化し出力を取り出す)、PR式整流器、高周波制御方式の高速パルスPR電源 [例えばHiPRシリーズ (株) 千代田] などが利用可能である。

[0046]

陽極部材と陰極部材との間に印加する電圧は、通常の水の電気分解の場合と同様である

[0047]

電解液14は、電解質を含む水である。ここにおける電解質としては、水溶性のアルカリ金属水酸化物(KOH、NaOHなど)またはアルカリ土類金属水酸化物〔例えばBa(OH)2、Mg(OH)2、Ca(OH)2など〕、あるいは第4級アルキルアンモニウムなど、またリン酸や硫酸など、従来公知のものを使用することができる。これらの中

でもKOHが好ましい。電解液中の電解質の含有量は、5~30%が好ましい。また、電解液のpHは、7~10であるのが好ましい。但し、NaClやHClのように電気分解によりハロゲンガスを発生するものは、装置の耐薬品性などが必要であり大量に使用した場合の環境汚染防止の観点から使用を避けるのが好ましい。

[0048]

図1~図6に示されている様に、電解槽10Aの上部には蓋部材10Bが付設されている。該蓋部材には、電解により発生する水素系-酸素系混合ガスを回収するための水素系-酸素系混合ガス取出口10B′が設けられている。該取出口10B′には、水素系-酸素系混合ガス採取管10B″が接続されている。これらの蓋部材10B及び水素系-酸素系混合ガス採取管10B″を含んで、水素系-酸素系混合ガス捕集手段が構成される。

[0049]

この具体例では、水素系ー酸素系混合ガスは水素ガスと酸素ガスとの均一な混合ガスとして回収される。このガスは、タンクに加圧状態でも常圧状態でも保管することができる。また図4や5の中央にガス分離膜を設けて水素系ガスと酸素系ガスを別々に分離、回収することもできる。

[0050]

電解槽10A及び蓋部材10Bの材質としては、例えばステンレススチール、銅、その他の金属に絶縁被覆を施したものあるいはポリカーボネート等の合成樹脂が例示される。尚、電解槽10Aには、内部の電解液14のレベル調整のための配管10A′が接続されている。

[0051]

振動撹拌手段16の振動棒16eは、蓋部材10Bを上下方向に貫通して延びている。この貫通は、図7及び図10に示されている様に、蓋部材10Bに設けられた開口の内端縁に付された固定部材10Dと振動棒16eの外面に付された固定部材10Eとの間をゴム板等のフレキシブル部材10Cにより気密にシールしたものとすることができる。あるいは、気密シールのための手段は、振動棒16eにサポートベアリングの内輪を取り付け、該サポートベアリングの外輪を蓋部材10Bの開口の内端縁に取り付け、外輪に対して内輪を上下に適宜のストロークにわたって移動可能にしたものであっても良い。蓋部材10Bに設けられた開口に、振動棒16eが通過する部分のみ開口したゴム板またはその積層体等の気密シール手段を取り付けてもよい。このシール手段としては例えば、ゴム、特に変形性良好な軟らかいゴムが使用できる。振動棒の上下振動の振幅は、通常20mm以下、好ましくは10mm以下、特に好ましくは5mm以下であり、その下限は例えば0・1mm以上、好ましくは0・5mm以上といった程度であるから、シール部材としてゴムなどを使用することで、追従が可能となり摩擦熱の発生も少なく良好な気密状態が実現される。

なお、より一層完全なシールを達成する手段としては、図68に示すようなタイプがある。このようなケースにおいては振動棒とパッキンの間のシールを一層安全、確実にするためたとえばシリコーン樹脂系の潤滑性シーリング剤(図68中ではシリコン充填と表現)を存在させたものである。

[0052]

また、安全装置として図59と図60の装置を一体化した図72のものを安全装置として使用することもできる。なお、ガス溜めは当然本発明のガス発生装置である電解槽に連結している。

[0053]

電解は、液温20~100℃で、電流密度7~40A/dm²で行なうのが好ましい。電解により発生する水素系一酸素系混合ガスは、図59に示されている様に、ガス採取管10B″に接続されたシールポット10B″を経て取り出される。シールポット10B″がもガス捕集手段を構成する。図60は、ガス発生装置により回収された水素系一酸素系混合ガスを利用するガス燃焼装置の一例を示す図である。水素系一酸素系混合ガスは、所要の容量のガス溜め、除湿器及び炎止めタンクを経て水素系一酸素系混合ガス供給口へ

と供給される。

[0054]

図15は振動撹拌手段の一変形例を示す断面図である。この例では、基台16 a は、振 動吸収部材41を介して電解槽10Aの上部に取り付けられた取り付け台40上に固定さ れている。また、取り付け台40には、垂直方向に上方へと延びた棒状のガイド部材43 が固定されており、該ガイド部材43はコイルバネ16b内に位置している。振動モータ 16 dとそれを駆動するための電源136との間には、振動モータ16 dの振動周波数を 制御するためのトランジスタ・インバータ35が介在している。電源136は、例えば2 00 Vである。このような振動モータ16 dの駆動手段は、上記その他の本発明の具体例 においても使用することができる。

[0055]

図16は振動撹拌手段の一変形例を示す断面図である。この例では、振動部材16cに 垂直方向に下方へと延びた棒状の上側ガイド部材144が固定されており、取り付け台4 0 に垂直方向に上方へと延びた棒状の下側ガイド部材145が固定されており、これらガ イド部材144、145はコイルバネ16b内に位置している。上側ガイド部材144の 下端と下側ガイド部材145の上端との間には、振動部材16cの振動を許容するような 適度の間隙が形成されている。

図17は振動撹拌手段の一変形例を示す断面図である。この例では、振動モータ16 d は、振動部材16の上側に付設された付加的振動部材16c′の下側に取り付けられてい る。また、振動棒16eは、電解槽10A内において分岐して2つの部分134とされて おり、これら2つのロッド部分134の間に振動羽根16 fが掛け渡されて取り付けられ ている。

[0056]

図18及び図19は振動撹拌手段の一変形例を示す断面図である。この例では、最も下 側の振動羽根16 f が下向きに傾斜しており、その他の振動羽根16 f が上向きに傾斜し ている。このようにすると、電解槽10Aの底部に近い部分の電解液14の振動撹拌を充 分に行うことができ、電解槽底部に溜りが発生するのを防止することができる。また、振 動羽根16fの全部を下向きに傾斜させることができる。

図20及び図21は本発明装置を構成する振動撹拌手段の電解槽への取り付けの他の形 態を示す断面図であり、図22はその平面図である。図20及び図21はそれぞれ図22 のX-X′断面及びY-Y′断面に相当する。

[0057]

この形態では、振動吸収部材として上記コイルバネ16bに代えてゴム板2と金属板1 、1′との積層体3が用いられている。即ち、積層体3は、電解槽10Aの上端縁部に固 定された取り付け部材118に防振ゴム112を介して取り付けられた金属板1′をボル ト131により固定し、該金属板1′上にゴム板2を配置し、該ゴム板2上に金属板1を 配置し、これらをボルト116及びナット117により一体化することで形成されている

[0058]

振動モータ16 d は支持部材115を介してボルト132により金属板1に固定されて いる。また、振動棒16eの上端部はゴムリング119を介して積層体3特に金属板1と ゴム板2とに取り付けられている。即ち、上側金属板1は図1、図4その他に記載されて いる具体例の振動部材16cの機能をも発揮するものであり、下側金属板1′は図1、図 4 その他に記載されている具体例の基台 1 6 a の機能をも発揮するものである。そして、 これら金属板1、1 を含む積層体3 (主としてゴム板2) が図1、図4その他に記載さ れているコイルバネ16bと同様な振動吸収機能を発揮する。

[0059]

図23A~23Cは積層体3の平面図を示す。図20~22の形態に対応する図23A の例では、積層体3には振動棒16 eを通すための貫通孔5が形成されている。また、図 23Bの例では、積層体3は貫通孔5を通る分割線により2分割された2つの部分3a、

3 b からなり、これによれば装置組立の際に振動棒 1 6 e を容易に通すことができる。また、図 2 3 C の例では、積層体 3 は、電解槽 1 0 A の上端縁部に対応する環形状をなしており、中央部に開口部 6 が形成されている。

[0060]

図23A、23Bの例では、電解槽10Aの上部が積層体3により塞がれ、これにより上記の蓄部材10Bと同等の機能が発揮される。

[0061]

図24A、24Bは、このような積層体3による電解槽の閉塞(シール)の様子を示す 断面図である。図24Aの形態では、ゴム板2が貫通孔5において振動棒16eに当接し てシールがなされる。また、図24Bの形態では、積層体3の開口部6において該積層体 3と振動棒16eとに取り付けられこれらの間の空隙を塞ぐフレキシブルジール部材13 6′が設けられている。

[0062]

図25A~25Eに振動吸収部材としての積層体3の例を示す。図25Bの例は上記図20~22の具体例のものである。図25Aの例では、積層体3は金属板1とゴム板2とからなる。図25Cの例では、積層体3は上側金属板1と上側ゴム板2と下側金属板1′と下側ゴム板2′とからなる。図25Dの例では、積層体3は上側金属板1と上側ゴム板2と中間金属板1″ど下側ゴム板2′と下側金属板1′とからなる。積層体3における金属板やゴム板の数は、例えば1~5とすることができる。尚、本発明においては、ゴム板のみから振動吸収部材を構成することも可能である。

[0063]

金属板1、1″ の材質としては、ステンレス鋼、鉄、銅、アルミニウム、その他 適宜の合金を使用することができる。金属板の厚さは、例えば $10\sim40\,\mathrm{mm}$ である。但し、積層体以外の部材に対して直接固定されない金属板(例えば上記中間金属板1″)は $0.3\sim10\,\mathrm{mm}$ と薄くすることができる。

[0064]

[0065]

図25Eの例では、積層体3は上側金属板1とゴム板2と下側金属板1′とからなり、ゴム板2が上側ソリッドゴム層2aとスポンジゴム層2bと下側ソリッドゴム層2cとからなる。ソリッドゴム層2a、2cのうちの一方を除去してもよいし、更に複数のソリッドゴム層と複数のスポンジゴム層とを積層したものであってもよい。

[0066]

図26は、振動撹拌手段16の変形例を示す図である。この例では、振動モータ16dが電解槽10Aの側方に位置しており、振動部材16cが電解槽10Aの上方へと水平に延びている。そして、該振動部材16cに振動棒16eが取り付けられている。この構成によれば、電解槽10Aに対する上記蓋部材10Bの着脱が容易となり、高さが低くなって安定度がまし、運送時の振動によるバネの横ゆれを防止できる。尚、図26には電解槽10Aの一側方に位置する振動撹拌手段16のみが示されているが、電解槽10Aの両側方に振動撹拌手段16を配置してもよい。

[0067]

以上の具体例においては、陽極部材及び陰極部材の少なくとも一方の表面に対向するよ

うに振動撹拌手段の振動撹拌部材を配置することで、陽極部材または陰極部材が1つであっても、その高いガス発生効率に基づき、装置あたりの高いガス発生量を得ることが出来る。

[0068]

図27〜図29は本発明による水素系ー酸素系混合ガス発生方法の実施される水素系ー酸素系混合ガス発生手段の一具体例の構成を示す図である。ここで、図27〜図28は断面図であり、図29は平面図である。

[0069]

本具体例においては、振動撹拌手段として絶縁式のものを用いている。即ち、 絶縁式振動撹拌部材として、振動部材16cに上端を取り付けられた振動棒上部分16e ′と、該振動棒上部分の下方に絶縁領域16e″を介して取り付けられた振動棒下部分1 6e′″とを含んでなる振動棒を使用している。

[0070]

振動モータ16 d とそれを駆動するための不図示の電源(例えば200V)との間には、振動モータ16 d の振動周波数を制御するためのトランジスタ・インバータが介在している。このような振動モータ16 d の駆動手段は、その他の本発明の具体例においても使用することができる。振動モータ16 d は、インバータを用いた制御により、上記具体例と同様に10~500 H z で振動する。振動モータ16 d で発生した振動は、振動部材16 c 及び振動棒(16 e、16 e′″)を介して振動羽根16 f に伝達される

[0071]

図30は、振動棒の電気的絶縁領域16e″の近傍を示す部分拡大断面図である。また、図31は電気的絶縁領域16e″の斜視図を示し、図32はその平面図を示す。

[0072]

電気的絶縁領域16e"は、例えば合成樹脂またはゴムで形成することができる。電気的絶縁領域16e"は、振動棒を構成するものであるから、振動により破損せず、振動モータの振動を効率よく伝達でき、十分な絶縁性を発揮する材料を選択するのが好ましい。この様な観点から硬質ゴムが最も好ましい。その一例としては、硬質ポリウレタンゴムを挙げることができる。なお、このような絶縁材料のみからなる部材では強度的に不十分である場合には、絶縁性を損なわない範囲で、絶縁部材のみからなる部材の周囲などを例えば金属などで補強して、所要の機械的強度を得ることができる。

絶縁領域16e"は、具体的には、例えば、図示される様な硬質ゴム製の円柱状絶縁部材(多角形状等形状は任意)よりなり、その中央の上部分及び下部分に、振動棒上部分16e′ 及び振動棒下部分16e′ でそれぞれ嵌合させるための嵌合用穴124、125が設けられている。これらの嵌合用穴は上下には貫通しておらず、そのため、これら嵌合用穴の間の非貫通部分は絶縁部として機能する。

[0073]

上下の嵌合用穴を貫通させた場合には、振動棒上部分16 e´と振動棒下部分16 e´とが接触しないように、上記非貫通部分に対応する箇所に絶縁材料を充填するか、絶縁に十分な程度の空間を設ける。円柱状絶縁部材の嵌合用穴124、125は、振動棒上部分16 e´と振動棒下部分16 e´の接合のために機能する。接合は、ネジ止め(たとは、図示されている様に、振動棒上部分16 e´の下端部と振動棒下部分16 eの上端部とに雄ネジを切り、嵌合用穴124、125に雌ネジを切って、両者を結合させ、必要に応じて更にその上にワッシャーリングを当て、ビス止めする)でもよいし、接着剤による接合でもよい。いずれにしても、これらの部分の構造は、目的とするガスを充分生成できれば、その他のいかなる構造であってもよい。

[0074]

たとえば、振動棒の直径が13mmの場合には、絶縁領域 $16e^{''}$ は、長さ(高さ)Lが例えば100mmであり、外径 r_2 が例えば40mmであり、嵌合用穴124、125の内径 r_1 が13mmである。

図30及び図27~図28に示されている様に、振動棒下部分16eの上部には、絶縁領域16e″の直下にて通電線127が接続されている。通電線127は電源34に接続されている。ここで、図27に示されているように、一方の絶縁式振動撹拌手段16(陽極部材2xに近接する方)の通電線127は電源の正極に接続されており、他方の絶縁式振動撹拌手段16(陰極部材2yに近接する方)の通電線127は電源の負極に接続されている。陽極部材2x及び陰極部材2yは、それぞれ図29に示される陽極主ブスバー201及び陰極主ブスバー202を介して電源34に接続されている。

[0075]

振動棒下部分16 e、固定部材16 j及び振動羽根16 f は導電性部材例えば金属からなる。これにより、一方の絶縁式振動撹拌手段の振動棒下部分16 e、固定部材16 j及び振動羽根16 f をも陽極部材として利用し、他方の絶縁式振動撹拌手段の振動棒下部分16 e、固定部材16 j及び振動羽根16 f をも陰極部材として利用して通電し、電気分解を行うことが出来る。更には、陽極部材及び陰極部材のうちの少なくとも一方を除去して、電気分解を行うことも可能である。

[0076]

振動羽根16f を陽極部材または陰極部材として利用する際には、特にこれらとは別の陽極部材または陰極部材を使用しない場合のように電極面積が不足する時には、出来るだけ振動羽根の面積を増加させるのが好ましい。そのためには、振動羽根の長さは、図14に示す第2回目のピークを示す長さ L_2 または第3回目のピークを示す長さ L_3 を選択することができる。また、振動撹拌を行なう振動羽根と電流を流す電極用振動羽根を同一の軸につけることもできる(図40、43、60など参照)

[0077]

本具体例では、絶縁式振動撹拌手段により電解液 14 を振動撹拌しながら電気分解を行うので、非絶縁式の振動撹拌手段を用いた場合と同様に、陽極部材と陰極部材との間の距離を例えば $20\sim400$ mmとしてもショートすることなく電解処理を行なうことができる。

[0078]

本具体例においては、振動棒上部分16 e′は絶縁領域16 e″により振動棒下部分16 e′″とは電気的に絶縁されているので、振動棒下部分16 e を介する通電の影響が振動モータ16 dへと及ぶことはない。更に、本具体例では、絶縁領域16 e″が熱絶縁性をも有するので、振動棒上部分16 e′ば振動棒下部分16 e′″とは熱的にも絶縁され、電解液14の温度の影響が振動モータ16 dへと及ぶことは少ない。

[0079]

また、本具体例の装置において、絶縁式振動撹拌手段の振動羽根を陽極部材又は陰極部材として用いずに電気分解を行なう場合においても、絶縁領域16e″が存在するので、電解液14内の通電の影響が振動モータ16dへと及ぶことがないという利点がある。

[0080]

図33は、絶縁式振動撹拌手段の他の具体例を示す側面図である。この具体例は、振動棒下部分16eに、振動羽根16fの他にこれと交互に配置された電極用補助羽根16f′を取り付けたことが、図27~図29の例と異なる。電極用補助羽根16f′は、導電性を有しており、振動棒下部分16eと電気的に接続されていて、電解液14に対する通電の際の一方の電極として機能し、従って振動撹拌の機能は必須ではない。電極用補助羽根16f′を使用する目的は電極面積の増加と当該電極と反対側の電極との間隔の低減とにあるので、電極用補助羽根16f′の大きさ(面積)は振動羽根16fより大きいほうが好ましく、また図示されている様に、補助羽根16f′の先端縁(右端縁)は振動羽根16f′の先端縁(右端縁)より更に右方へと突出しているのが好ましい。

[0081]

電極用補助羽根16f′は、振動羽根と振動羽根との中間に位置する様に振動棒に取り付けるのが好ましいが、必ずしもこれに限定されることはなく、振動撹拌の効果を著しく低減させない限りは、上下一方の振動羽根に近接して配置することも可能である。振動棒

下部分16eへの電極用補助羽根16f′の取り付けは、振動羽根16fの取り付けと同様にして行なうことができる。

[0082]

電極用補助羽根16f の材質としては、電極として使用され得るものであればよいが、振動棒の振動に従って振動するものであるから、振動に耐え得ることが要求され、例えば振動羽根として使用可能な導電体例えば金属例えばチタン(表面に白金めっきを施すことができる)またはステンレス(表面に白金めっきを施すことができる)を使用することができる。尚、電極用補助羽根16f を使用する場合には、振動羽根16f は必ずしも導電性材料からなる必要はなく、合成樹脂製のものを使用することも可能である。振動羽根16f の角度を一定にするため、振動羽根固定部材16f に角度をつけて振動棒16e と一体的に組み立てることもできる。

[0083]

図34及び図35は絶縁式振動撹拌手段の他の具体例を示す断面図である。本具体例では、2つの振動棒にわたって各振動羽根が取り付けられている。

[0084]

図36は振動羽根16fの近傍を示す断面図である。振動羽根16fは固定部材16jからはみ出した部分が振動流動の発生に寄与するのであり、このはみ出した部分は幅 D_1 で長さ D_2 である。本具体例では、複数の振動棒にわたって各振動羽根が取り付けられているので、各振動羽根の面積を十分大きくとることができる。かくして、大きな振動流動を得ることができ、また電極として使用される面積を大きくすることが可能である。

[0085]

本具体例においては、図示はしないが、図27~図29に関し説明した様な電気分解手段の電源34が使用される。本具体例においても、図33の具体例と同様に、電極用補助 羽根を使用することができる。

[0086]

図38は絶縁式振動撹拌手段の1つの具体例を示す断面図である。本具体例の絶縁式振動撹拌手段16においては、振動モータ16dは、電解槽10A外に配置されていて、振動部材16cが電解槽10Aの方へと延びている。本具体例においても、図示はしないが、図27~図29に関し説明した様な電気分解手段の電源34が使用される。本具体例においても、図33の具体例と同様に、電極用補助羽根を使用することができる。また、図では絶縁式振動撹拌手段が電解槽の片側にのみ配置されているが、もう一方の側にも同様な絶縁式振動撹拌手段を配置することが可能である。

[0087]

図39は絶縁式振動撹拌手段の他の具体例を示す断面図である。本具体例では、図38の具体例と同様な振動モータ16d、振動部材16c、振動棒16e及び絶縁領域16e″の組が、電解槽10Aの両側に配置されている。そして、振動棒16eは、コの字形状をなしており、その2つの垂直部分が2つの絶縁領域16e″にそれぞれ対応して配置されている。これら2つの垂直部分の上端がそれぞれ絶縁領域16e″を介して2つの振動棒16eにそれぞれ接続されている。振動羽根16fは、振動棒16eの水平部分にほぼ垂直に取り付けられている。図では振動羽根16fは上方に突出しているが、下方に突出していてもよい。また、振動羽根16fは垂直方向に対して傾斜をもって配置されてもよいことは上記と同様である。

[0088]

図示されている絶縁式振動撹拌手段の上方突出の振動羽根を陽極部材として使用し、他の絶縁式振動撹拌手段の下方突出の振動羽根を陰極部材として使用して、電解処理を行うことが出来る。この場合、後述の図43に関し説明するように、双方の絶縁式振動撹拌手段の振動羽根同士を互いに入り組んだ形態とすることが可能である。

[0089]

本具体例のように、振動棒は必ずしも上下方向を向いて配置される必要はなく、電解槽 の形状などに応じて適宜の形状及び配置のものを使用することが出来る。

[0090]

本具体例においても、図示はしないが、図27~図29に関し説明した様な電気分解手 段の電源34が使用される。本具体例においても、図33の具体例と同様に、電極用補助 羽根を使用することができる。

[0091]

図40~図42は水素系-酸素系混合ガス発生手段の一具体例を示す図である。ここで 、図40~図41は断面図であり、図42は平面図である。本具体例は、図27~図29 の具体例において電極用補助羽根16f′を追加使用したものに相当する。

[0092]

図43~図44は水素系-酸素系混合ガス発生手段の一具体例を示す図である。ここで 、図43は部分断面図であり、図44は断面図である。

[0093]

本具体例では、2つの絶縁式振動撹拌手段が電解槽10A内に配置されており、一方の 絶縁式振動撹拌手段の隣接する電極用補助羽根16 f´ どうしの間に他方の絶縁式振動撹 拌手段の電極用補助羽根16 f ′ が位置している。これにより、2つの絶縁式振動撹拌手 段の一方を陽極側として使用し且つ他方を陰極側として使用することで、大面積の陽極部 . 材と陰極部材とを互いに近接して配置することができ、電流密度を著しく向上させること ができる。このような非接触で互いに入り組んだ形態での陽極部材と陰極部材との配置は 、2つの絶縁式振動撹拌手段の振動羽根同士でも同様にして行うことが出来る。

[0094]

本具体例においては、互いに上下方向に近接して配置される陽極部材(振動羽根または 電極用補助羽根)と陰極部材(振動羽根または電極用補助羽根)との距離を例えば5~5 0 mmとすることができる。本具体例においては、2 つの絶縁式振動撹拌手段の電極用補 助羽根16f′どうしが接触してショートするのを防止するために、図37に示す様に、 電極用補助羽根16f^の両面の外周部等を絶縁テープ16faなどの貼付や絶縁塗料の 塗布などにより絶縁部とすることが好ましい。電極部材として使用する振動羽根16 f 同 士を同様にして互い違いに配置することも可能であり、その場合にも同様な絶縁部を形成 することが出来る。或いは、同様な絶縁効果を得るために、同等の形状を有するプラスチ ック製絶縁板を配置してもよい。

[0095]

図45~図47は、絶縁式振動撹拌手段の1例を示す模式図である。これらの例では、 共通の振動部材 1 6 c に複数の振動棒が接続されている。各振動棒下部分 1 6 e に接続さ れる通電線127は、それぞれ電源の図示される極に接続されるが、これに限定されるこ とはなく、適宜変更してもよい。 [0096]

以上の具体例においては、絶縁式振動撹拌部材の一部(例えば、振動羽根、電極用補助 羽根)を陽極部材または陰極部材として使用することで、絶縁式振動撹拌部材以外の陽極 部材または陰極部材がなくとも、その髙いガス発生効率に基づき、装置あたりの高いガス 発生量を得ることが出来る。

[0097]

図48は絶縁式振動撹拌手段の他の具体例の構成を示す部分断面図であり、図49はそ の部分側面図である。本具体例では、2つの振動棒16 eを機械的に接続する様に取り付 けられている振動羽根16f及び固定部材16jを2つの群に区分し、第1の群を一方の 振動棒16eと電気的に接続させ、第2の群を他方の振動棒16eと電気的に接続させ、 これら2つの群の間で電圧を印加することで、電解液14に通電し電解処理を行なう様に [0098]

即ち、図48において、上側から奇数番目の振動羽根16f及び固定部材16jは、右 側の振動棒16eとは電気的に接続されているが、左側の振動棒16eとは絶縁ブッシュ 16s及び絶縁座金16tを介して取り付けられることで電気的に絶縁されている。一方

、上側から偶数番目の振動羽根16f及び固定部材16jは、左側の振動棒16eとは電 気的に接続されているが、右側の振動棒16eとは絶縁ブッシュ16s及び絶縁座金16 t を介して取り付けられることで電気的に絶縁されている。かくして、上側から奇数番目 の振動羽根16f及び固定部材16jを第1の群とし、上側から偶数番目の振動羽根16 f 及び固定部材16jを第2の群とし、左側の振動棒16eに接続されている通電線12 7と右側の振動棒16eに接続されている通電線127との間に不図示の処理用電源によ り所要の電圧を印加することで、第1の群(陽極部材)と第2の群(陰極部材)との間で 電解液14に通電することができる。尚、図49では絶縁ブッシュ16g及び絶縁座金1 6 tの図示が省略されている。

[0099]

本具体例においては、絶縁領域16e″は振動棒16eと振動発生手段を構成する振動 部材16cとの間に設けられている。即ち、ここでは、絶縁領域16e″が、上記具体例 における振動部材16cへの振動棒16eの取り付け部111の機能を兼ねている。

本具体例においては、陽極側となる振動羽根16fとしてはチタンの表面に白金めっき を施したものが好ましく用いられ、陰極側となる振動羽根16fとしてはチタンが好まし く用いられる。

本具体例によれば、絶縁式振動撹拌手段に対する給電のみで電解処理が可能となるので 、装置をコンパクトなものとすることができる。また、振動羽根16fを陽極部材及び陰 極部材のそれぞれとして兼用しているので、この点からも装置のコンパクト化がなされて

[0100]

図 5 0 は絶縁式振動撹拌手段の他の具体例の構成を示す部分側面図である。本具体例で は、図48及び図49の具体例における上側から偶数番目の振動羽根16 f に代えて陽極 部材(振動補助羽根)16f″を使用している。この陽極部材16f″は、振動撹拌には 寄与せず、図の右側にのみ延びている。陽極部材16f″としては、例えばチタン製ラス 網(表面に白金めっきを施したもの)が好ましく用いられる。一方、上側から奇数番目の 振動羽根16fに対してスペーサ16uを介して陰極部材(振動補助羽根)16f″′ を 追加している。この陰極部材16 f ″ ′ も、振動撹拌には寄与せず、図の右側にのみ延び ている。陰極部材16f″′としては、例えばチタン板が好ましく用いられる。尚、陰極 部材の場合と同様に、陽極部材とともに振動羽根を取り付けてもよい。本具体例では、振 動羽根16fとは別に電極部材としての陽極部材16f″及び陰極部材16f″′を使用 しているので、電極材料の選択の自由度が増加する。図50のように陽極部材や陰極部材 は振動羽根とは反対方向に伸びているので、振動羽根と接触する心配がなく、そのため振 動羽根と陽極部材または陰極部材の間隔を一層つめることができる。

[0101]

図51は水素系-酸素系混合ガス発生手段の一具体例の構成を示す断面図である。本具 体例は、図48~図49の絶縁式振動撹拌手段を2つ使用したものである。

[0102]

以上の具体例においては、絶縁式振動撹拌部材に陽極部材及び陰極部材の双方を取り付 けて、これらの間で電解液14を介して通電することで電解処理を行うので、装置の小型 化が可能であり、更にその高いガス発生効率に基づき、装置あたりの高いガス発生量を得 ることが出来る。

[0103]

図52~図53は水素系-酸素系混合ガス発生手段の一具体例の構成を示す断面図であ る。本具体例では、振動撹拌手段として非絶縁式のものが用いられており、陽極部材及び 陰極部材からなる電極対として、図48~図49の絶縁式振動撹拌手段と類似の構成体を 使用したものである。即ち、上下方向に互いに平行に配列された2本の導電性棒状体11 6 e に、陽極部材 1 1 6 f ″ 及び陰極部材 1 1 6 f ″ ′ を図 4 8 ~ 図 4 9 の絶縁式振動撹 拌手段の第1群の振動羽根及び第2群の振動羽根の場合と同様にして取り付け、各導電性 棒状体116eを電源の正極及び負極の所要のものに接続している。

[0104]

図54及び図55は水素系-酸素系混合ガス発生手段の一具体例を示す断面図である。本具体例では、絶縁式振動撹拌手段16の振動羽根16fを陰極部材として使用し、陽極部材86として、図56に示される円柱状チタン網ケース内に複数の金属製ボールを充填したものを使用し、金網を水平方向に保持したもの(図55参照)を用いている。陽極部材86の保持手段82は例えば陽極ブスバーである。

陽極部材86としては、例えばチタン製ラス網(表面に白金めっきを施したものが好ましい)からなるものを使用することが出来る。図57にラス網陽極部材の正面図を示す。 上部に吊下げ用の孔が2つ設けられており、中央部から下部にかけて網状部とされており、この網状部が電解液中に浸漬される。

[0105]

図58A~図58Eは、振動発生手段と振動撹拌部材との接続形態の例を示す模式図である。図58Aの例では、振動発生手段の振動部材16cに直接振動撹拌部材の振動棒16eが接続されている。これに対して、図58B~図58Eの例では、振動部材16cに中間部材16ccが取り付けられており、該中間部材16ccに振動棒16eが接続されている。

[0106]

電解槽内で発生した水素系-酸素系混合ガスを均一に混合した状態で捕集するための捕集手段は、電解槽の上方を覆う蓋部材とその蓋部材に設けられたガス取出口とそれに連結されたガス採取管を含むものである。とくに蓋部材には、前記電解槽を上方から包みこむように密閉した囲み部材を付設し、発生したガスの漏れを完全に防止する(例えば図61参照)。本発明の振動撹拌手段の具体例などを説明する図面においては、発生するガスを効率よく捕集するための前記蓋部材は省略して画かれているが、実際には必ず蓋部材を使用する。

[0107]

蓋部材と囲み部材により発生した水素系一酸素系混合ガスを密閉するとその部分のガス圧が上る。ガス圧はある程度ある方が、その後のガスの取り扱い上便利な面が生じる。しかし、ガス圧を調節する手段が併設できれば一層好都合である。ガス圧調節手段の1例としては図59に示すようなシステムがある。シールポットは例えば水80%、メタノール(着色料)20%よりなる液体を入れたものである。また、図60に示すように水素系一酸素系混合ガス供給口とガス発生手段あるいはガス溜めとの間に炎止めタンク、フレームアスレターを設け、炎の逆流を防止することが好ましい。なお、燃料電池へ直結する場合はシールポットは必ずしも必要ではない。本発明の水素系ガスや水素系一酸素系混合ガスは、安全性およびガスが肉眼で見えるようにするため、シールポットでガスを処理しているが、もし別の手段で安全性が確保できるのであれば、ガスを処理することなく、生ガスの状態で電池に供給した方が、処理液中で水素の1部が失われることがないから有利である。

[0108]

図61に、蓋部材10Bの変形例を示す。この例では、蓋部材10Bは、図1に示されている電極群2x、2yの上方の部分のみにおいて、電解槽10Aに付設される。そして、該蓋部材10Bの両端部には、下方へと延びた囲み部材63が付設されている。この囲み部材63には、その下部の電解液中に浸漬される部分に該電解液の流通を可能となすための開口65が形成されている。囲み部材63には、該開口65の上部領域の一部を遮蔽する遮蔽板64を上下位置調節可能に取り付けることができる。この上下位置調節のために、遮蔽板64に上下方向の長孔66を形成し、該長孔を介して、囲み部材63に形成されたネジ穴68にボルト67を適合させるようにすることができる。遮蔽板64の上下位置を調節することで、電極群2x、2yの上方の部分の液位を調節することができ、ひいてはガス圧が調節される。

この蓋部材を使用する場合には、振動撹拌手段の振動棒16eは蓋部材を貫通しないが 、上記の様な密閉シール構造とすることが、水素系ー酸素系混合ガスの回収効率向上や電 解液の飛散防止等の観点から、好ましい。

[0109]

図62〜図64の水素系-酸素系混合ガス発生手段は、図52〜図53の水素系-酸素 系混合ガス発生手段を一層具体化した装置を示すものである。

[0110]

燃料電池の燃料極側に設けられた供給口から、水素系一酸素系混合ガスを供給すると、水素は燃料極に電子を与えながら、水素系一酸素系混合ガスはガス透過性である燃料極を通り抜けて電解質層または中空層にはいり込む。ガス透過性にするためには燃料極を例えばポーラスな構造とすることにより達成できる。

なお、本発明においては、電解質層が不要であるため、この部分を中空の状態(多孔性プラスチック層や多孔性セラミック層としてもよい)とし、これを中空層と称している。この部分は燃料極と空気極を隔離できればそれで充分な部分である。通常、中空層の厚みはμm単位から10cm位までの範囲である。

[0111]

例えば、電解質として固体高分子電解質を用いるとすると、カチオン交換膜を電解質と した場合には、次のような電池反応が起こる。

陽極 : $1/2 O_2 + 2 H^+ + 2 e \rightarrow H_2 O$ (1) 陰極 : $H_2 \rightarrow 2 H^+ + 2 e$ (2) 全反応: $1/2 O_2 + H_2 \rightarrow H_2 O$ (3)

アニオン交換膜を電解質とした場合には、次のような電池反応が起こる。

陽極 : $1/2O_2 + H_2O + 2e \rightarrow 2OH^-$ (4) 陰極 : $H_2 + 2OH^- \rightarrow 2H_2O + 2e$ (5) 全反応: $1/2O_2 + H_2 \rightarrow H_2O$ (6)

固体高分子電解質をガス透過性とするためには、電解質となる固体高分子を繊維状とし、これを織布や不織布の形体とすることなどにより達成できる。

なお、本発明においては、電解質層は中空層でもよいのであるから、ここにおける繊維 状物質は固体高分子電解質でない単なる繊維状物質を用い、これを含む層を中空層として もよい。

[0112]

したがって、反応生成物である水は電解質層または中空層の所定の個所から排出する必要があり、また未反応ガスがある場合を考えると、ガスの流れをスムースにするため、電解質層または中空層にガス排出口も設けることが好ましい。なお、未反応ガスと反応生成物の水とを同時に1つの排出口から系外へ出すこともできる。・

[0113]

燃料電池は、それに用いる電解質の種類によりいろいろのタイプに分類される。例えば、アルカリ型燃料電池、固体酸化物型燃料電池(SOFC)、燃料溶解型燃料電池、リン酸型燃料電池(PAFC)、固体高分子電解質型燃料電池(PEFC/PEM)、溶融炭酸塩型燃料電池などがあり、本発明は、いずれのタイプの燃料電池にも使用できるが、リン酸型燃料電池、固体高分子電解質型燃料電池、固体酸化物型燃料電池あるいはメタノール直接型燃料電池(当然本発明では燃料としてメタノールを用いるのではなく、本発明の水素系一酸素系混合ガスを用いる)に適用するのが好ましく、とりわけ固体高分子電解質型燃料電池や固体酸化物型燃料電池に適用するのがもっとも好ましい。

本発明においては、電解質層は中空層であってもよいわけであり、中空層の方がコスト 的にもっとも有利であることは勿論である。

[0114]

固体高分子電解質型燃料電池は、固体高分子電解質を使用するのが、この固体高分子電解質としては各種の高分子イオン交換膜を挙げることができ、その例としては、平成5年3月15日株式会社オーム社発行、「燃料電池発電システム」第100~103頁とくに第101頁表-1記載の「フェノールスルフォン酸樹脂」、「ポリスチレンスルフォン酸」、「(ポリ)パーフルオロカーボンスル

フォン酸」などが挙げられる。とくに「 (ポリ) パーフルオロカーボンスルフォン酸」と しては、下記式

【化1】

$$-(CF_{2}-CF_{2})_{X}-(CF_{2}-CF)-CF_{2}$$

$$CF_{2}$$

$$CF_{3}-CF$$

$$CF_{2}$$

$$CF_{2}$$

で示される構造のものが用いられている(xは重合度によって変化する)。

 $m \ge 1$ 、n = 2 のものは商品名Nafionとして、

m=0、n=2 のものは商品名DOW膜として、

それぞれ市販されており、これらの物性は、2001年11月30日コロナ社発行「燃料電池発電」第116~128頁、とくに第120頁表6,1に記載されている。

また、この種の固体高分子電解質型燃料電池の構造は、昭和62年9月30日(株)サイエンスフォーラム発行「燃料電池設計技術」第102頁の図-2、図-3および「燃料電池発電」第118頁、第122頁および2001年6月29日 日経BP社発行「日経メカニカル別冊」第46~47頁に記載されている。

【発明の効果】

[0115]

- (1) 本発明の水素系-酸素系混合ガスまたは水素系ガスは、燃料電池用燃料として使用すると、従来の水素ガスを用いた場合に較べて驚くほど高いエネルギー効率(2~3.5倍の電力を発生できる)を示す。これは、その成分中にOHを含有していること、さらにはH、H3および/またはHDを含有していることによるものと推定される。
- (2) 本発明の水素系-酸素系混合ガスまたは水素系ガスは、通常のプラウンガスに比べて極めて安全であり、貯蔵しておくことが事実上可能であり、ガス組成も驚くべきことに少なくとも1~2ヶ月間は変化がなく、その結果、ガス製造直後と同一の発電能力を保つ
- (3) 通常のブラウンガスは危険性が高いので、圧縮することはできないが、本発明の水素系-酸素系混合ガスまたは水素系ガスは100~300kg/cm²程度まで圧縮しても安全であり、この状態で貯蔵可能である。
- (4) 本発明の水素系-酸素系混合ガスまたは水素系ガスは従来から用いられている燃料電池の燃料としてそのまま使用しても従来の水素ガスを用いたときの2~3.5倍の電力が得られる。
- (5) 本発明の水素系-酸素系混合ガスまたは水素系ガスを用いる場合には、従来の燃料電池では必要条件とされている電解質層は不要であり、燃料極と空気極がショートしない

- ような中空層が存在するだけで済むから、電解質が不要の分だけコスト削減につながる。
- (6)請求項8の燃料電池は、電解質層が不要であるため構造が簡素化され、製造コスト 、修理コストが低減するとともに、故障の確率も低減する。
- (7) 従来の水素ガスを用いた燃料電池では、供給ガスを80℃程度に加温して水素と酸素の反応を促進してやる必要があり、また結露を防ぐためにも80℃に保温しておく必要があった。しかし、本発明の水素系ガスや、水素系-酸素系混合ガスを用いる場合には、加温の必要は全くない。

【実施例】

[0116]

以下に実施例を挙げて本発明を説明するが、本発明はこれにより何ら限定されるものではない。

[0117]

実施例1

本実施例で使用した水素系-酸素系混合ガス発生手段の概略を図65~図67に示す。 (イ) 使用する振動撹拌手段

日本テクノ(株)商品名超振動 α -撹拌機 α - 1型(電解液中を流れている 電流が振動モータにまで流れることがないように配慮され ている)

振動モータ: 75W×200V×3相

(株) 村上精機製作所製低周波振動モータ

商品名ユーラスバイブレーター

振動棒: SUS304製直径16mmのもの2本 振動羽根: SUS304製厚さ6mmのもの4枚

固定部材:SUS304製

弾性部材シート:商品名テフロン(登録商標)シート

(口) 固定電極

プラス極:チタン板に白金めっき被覆したもの27枚

マイナス極:チタン板24枚

- (ハ) 使用インバータ: 富士電機(株) 製商品名FVR-E11S45Hzに調整して使用
- (二)使用整流器(振動モータ用):中央製作所製Power Master 、200V
- (ホ)電解槽:SUS304製(内面に塩化ビニル樹脂被覆したもの) 内径220mm×320mm×400mm (H) 蓋部材はSUS304である。
- (へ) 蓋部材と振動棒との間のシール (図68参照) 振動モータの振動軸への振動によってもガス漏れが発生しないよ うシリコン充填によりシールを完全にした。
- (ト)水素系-酸素系混合ガスを電解槽から燃料電池に導くに当っては、図59や図60の安全装置を使用するが、本実施例では図59と図60の安全装置を併用したタイプの図72のシステムを用いた。
- (チ)使用電解液:蒸留水にKOH20wt%を溶解したもの 55℃、pH10で電解を行い必要量の水を補充する。 本実施例では100アンペアー、3Vで約1000リットル /分の水素系-酸素系混合ガスを製造できた。
- (リ) 燃料電池の構造と使用法:

本発明の水素系-酸素系混合ガスを用いて、市販の小型固体高分子型燃料電池 を利用して発電を行った。この電池の各部品の構成は図69に示すとおりで あり、これを組立てた燃料電池の断面図を図70に示す。図70の左側の開 口部(この市販装置はこの開口部より水素ガスを供給する)より水素系-酸素系 混合ガスを供給し、右側の開口部 (この市販装置ではこの開口部より酸素含有ガス、例えば空気を供給する) はシールする。

図69の市販小型固体高分子型燃料電池の構成において、外周ゴムリング付プレートに 膜/電極接合体すなわちMEA(2001年8月20日 株式会社日本実業出版社発行、 池田宏之助編著「燃料電池のすべて」第146~147頁参照)が単セルの機能部分であって、固体高分子電解質である商品名Nafionをマイナス極とプラス極でサンドイッチしたものの外周をゴムリングで覆った構造のものである。本発明においては、水素系一酸素系混合ガスは図69に示すとおり、図69における図の上部に存在する中央の孔から供給されるが、図69における図の下部にある孔(本来空気供給用の孔)はゴム栓によりシールされている。

この電池を単セルとして、市販小型固体高分子型燃料電池の本来の使用方法で発電した場合(従来例)は、その出力は $0.6\sim0.7$ V、 $0.15\sim0.2$ Wであるが、実施例1 の場合の出力は0.6 V、0.5 Wであり、出力が2.5 倍となっている。

また、従来の使用方法で発電した場合は、長時間使用すると100℃近くまで発熱するので、長時間の使用が困難であるが、この実施例の場合は余り発熱せず、長時間の使用が可能である。

図70に示すように、これを単セルとして使用するときは接続端子1を燃料極とし、接続端子3を空気極として使用し、2セルとして使用するときは、接続端子3を燃料極とし、接続端子2を空気極として使用し、3セルとして使用するときは、接続端子1を燃料極とし、接続端子2を空気極として使用する。

なお、この電池における電解質層は、図69の外周ゴムリング付プレートに相当しており、この層は水を含浸した多孔質高分子(通常、トリエチルホスフェートを可塑剤にしたポリパーフルオロカーボンスルフォン酸の多孔質膜;デュポン社商品名Nafion)であり、水素と酸素とが反応して生成する反応水はここから浸み出して外部に排出される。

また、前記電解質層をとりのぞき、その部分を中空層すなわち空気層とし、ガス透過性の極板を通して本発明の水素系一酸素系混合ガスを導入したところ、混合ガス中に含まれている水分(H2O)が電解質的な作用をしているのか、ともかく驚くべきことに電解質層がなくても電解質層がある場合と全く同様に発電が行なわれた。

[0118]

実施例1で得られた水素系-酸素系混合ガスを前述の分析手法に従って分析した結果も前記表1の処理ガスのデータとほとんど同一であった。とくに、H、H3、HD、OHを含有している点が特徴的であり、これらの存在が活性の高さ、高エネルギー発生の原因になっているものと推定される。また、水素と酸素の比が2:1ではなく、水素がリッチな点も特徴的である。

このような成分をもつ水素系-酸素系混合ガスまたは水素系ガスは、振動撹拌手段を採用した場合のみに認められることであり、これ以外の方法で得られた水素ガス、酸素ガス、水素系-酸素系混合ガスでは認められないピークである。

前記含有成分は非常に不安定なものと考えられていたが、本発明の振動撹拌手段を用いて得られた水素系-酸素系混合ガスまたは水素系ガス中のこれらの成分は密閉容器中で、あるいは圧力容器中で1ヶ月~2ヶ月位存続することができる。

[0119]

実施例 2

実施例1のように電解槽で発生したガスを安全装置を通して直接燃料電池に送ることをせず、電解槽で発生した実施例1の水素系-酸素系混合ガスをガス溜めに貯蔵し、1日放置後、図59のシールポットや図60の炎止めタンクを通すことなく、直接実施例1の燃料電池の水素ガス供給口に前記水素系-酸素系混合ガス(生ガス)を供給したが、実施例1と同一の効果が得られた。また、この生ガスを前記と同様に分析した結果、前記生ガスの分析結果とほぼ同様のデータが得られた。とくにH、H3、HD、OHをほぼ同程度含有している点においても共通していることが確認できた。

[0120]



本実施例で使用する水素系-酸素系混合ガス発生手段の概略を図50に示す。図50の 断面図は基本的には図48(ただし羽根の数が異なっている)に対応するものである。

(イ) 振動撹拌手段(絶縁式振動撹拌手段)

日本テクノ (株) 商品名超振動 α - 撹拌機 (α-2型)

振動モータ:150W×200V×3相

振動棒: SUS304製直径16mmのもの2本 振動羽根: SUS304製厚さ6mmのもの5枚

振動補助羽根

極板マイナス側: SUS304製3枚

極板プラス側 : SUS304製に白金めっき (10μm厚)

したもの2枚

(ロ) 使用インバータ:富士電機 (株) 製商品名FVR-E11S

55Hzに調整して使用

- (ハ) 使用整流器:中央製作所製Hi-Mini、200V
- (二) 電解槽: SUS304製

内径220mm×320mm×440mm (H)

内面塩化ビニル樹脂被覆したもの

蓋部材はSUS304である。

(ホ) 蓋部材と振動棒との間のシール (図68参照)

振動モータの振動軸への振動によってもガス漏れが発生しないようシリコン充填によりシールを完全にした。

- (へ)水素系-酸素系混合ガスを電解槽から燃料電池に導くに当っては、図59や図60の安全装置を使用するが本実施例では図59と図60の安全装置を併用したタイプの図72のシステムを用いた。
- (ト) 使用電解液:蒸留水にKOH20wt%を溶解したもの

50℃、pH10で電解を行い必要量の水を補充する。液は冷却しなくても温度上昇は認められなかった。

本実施例では100アンペアー、3Vで約1000リットル/分の水素系-酸素系混合ガスを製造できた。

以上の手段により生成した水素系-酸素系混合ガスは、前述の分析手法で分析した結果、前記表1の処理ガスとほぼ同様の分析結果を示し、H、H3、HD、H2O、OHをほぼ同程度含有している点においても共通していることが確認できた。この水素系-酸素系混合ガスを図73に示す固体高分子電解質型燃料電池に供給した。ただし、この燃料電池においては燃料極外側に水素系-酸素系混合ガスを供給し、未反応のガス成分と反応生成物の水は空気極外側より排出した。燃料極も空気極もガス透過性の白金触媒担持電極であり、固体高分子電解質膜はデュポン社の商品名Nafion(ポリパーフルオロカーボンスルフォン酸)に水を含浸した通気性のものを用いた。

その結果、実施例1と同程度の発電効果が得られた。

また、図73に示す固体高分子電解質型燃料電池から、高分子製電解膜を取除き、その部分を中空層(空気層)とした以外は同様のテストを行なったところ、ほぼ同様の発電効果が得られた。

[0121]

実施例4

実施例1において、燃料電池として図74に示す燃料電池を用いた以外は実施例1を繰り返した。

固体電解質膜は、ガス透過性のイオン導電性薄膜(500nm以下)で白金製のガス透過性マイナス極と白金製のプラス極に挟まれており、マイナス極はガス透過性になっている。

前記ガス透過性のイオン導電性薄膜としては、前記ポリパーフルオロカーボンスルフォ

ン酸に相当する商品名Nafionを用いた。また、前記ガス透過性マイナス極は、多孔性の薄い導電性カーボンペーパーに粉末状白金をまぶして固定したものを用いた。

この実施例では、市販水素ガスボンベを水素ガス燃料として用いた燃料電池に較べてほぼ同様の電力が得られるのは驚くべきことであり、これは、振動撹拌手段を用いて得られた水素系-酸素系混合ガスの特性である。

また、図74に示す燃料電池より高分子製電解質膜を中空層とした以外は実施例4を繰り返したが、ほぼ同様の発電効果が得られた。

[0122]

実施例 5

実施例 1 における振動モータを高周波振動モータ商品名ハイフレユーラス K H E 2 - 2 T に変更し、インバータで 1 2 0 H z で振動させた以外は実施例 1 を繰り返した。実施例 1 とほぼ同様の結果が得られた。

[0123]

実施例6

図35に本発明に用いた水素系-酸素系混合ガス発生手段の概略的図面を示し、図48は振動羽根等の枚数が図35や図50のものと異なるが、振動棒への振動羽根等の取付け状態を示し、図50は、図48の側面側の側面図を示している。振動羽根と振動補助羽根(陰極部材)の数は後述(イ)の項目に述べたとおりである。

(イ) 使用する振動撹拌手段

日本テクノ(株)商品名絶縁式超振動 α −撹拌機 α − 2 型

振動モータ: 150W×200V×3相

(株)村上精機製作所製低周波振動モータ

商品名ユーラスバイブレーター

振動棒:SUS304製直径16mmのもの2本

振動羽根: SUS304製厚さ6mmのもの5枚

振動補助羽根 (電極部材):

陰極部材:SUS304 3枚

陽極部材:SUS304に10μmの白金めっきを

したもの 2 オ

固定部材: SUS304製

弾性部材シート:商品名テフロン(登録商標)シート

(ロ) 使用インバータ:富士電機 (株) 製商品名FVR-E11S-2

55Hzに調整して使用

- (ハ) 使用整流器 (振動モーター用) :中央製作所製Power Master 、200V
- (二)電解槽:SUS304製(内面に塩化ビニル樹脂被覆したもの)

内径220mm×320mm×400mm (H)

蓋部材はSUS304である。

(ホ) 蓋部材と振動棒との間のシール (図68参照)

振動モータの振動軸への振動によってもガス漏れが発生しないようシリコン充填によりシールを完全にした。

- (へ)水素系-酸素系混合ガスを電解槽から燃料電池に導くに当っては、図59や図60の安全装置を使用するが、本実施例では図59と図60の安全装置を併用したタイプの図72のシステムを用いた。
- (ト)使用電解液:蒸留水にKOH20wt%を溶解したもの(約55℃以上に 昇温することはないため、電解液を冷却する必要はない。) 55℃;pH10で電解を行い、必要量の水を補充した。
- (チ) 水素系-酸素系混合ガスの組成;

前述の分析手法で分析した結果、前記実施例と同様、前記表1の処理ガスデータとほぼ 同一の結果が得られた。

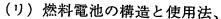


図73に示す燃料電池の構造物(2001年6月29日、日経BP社発行、日経メカニカル別冊、「燃料電池開発最前線」図3-1-1および図3-1-2参照)を利用した。

図73に示す高分子固体電解質膜は、前述の商品名Nafionである。電極は、カーボンブラックの微粒子に白金系触媒を担持したものであって、白金系触媒を高分子電解質ポリマーに分散し、これをカーボンペーパー上にスクリーン印刷して得られたものである。この電極の間に前記Nafionを挟み、熱圧着してMEA(膜/電極接合体)としたものを一単位のセルとし、これを20枚積層したのが図73の下段に示すスタックである

図73に示す燃料極(陰極)側より本発明の水素系-酸素系混合ガスを導入し、排出口から反応残渣を排出する。なお、本実施例においては空気極側の空気口はシールして使用した(図73のものの本来の使用法は燃料極に水素を、空気極に空気をそれぞれ供給するため、燃料極側と空気極側にそれぞれ供給口があるが、本発明では燃料極側に水素系-酸素系混合ガスを供給するため、空気極側に空気すなわち酸素を供給する必要はない)。

本実施例の場合は、水冷をしなくても80℃以下に保たれた状態で2日間連続発電が可能であったが、図73本来の使用法によると、冷却をしないと電池は100℃以上に発熱し、高分子膜が破壊した。また発電効率も本発明のものは、本来の使用法の場合に較べて30~40%向上した。

[0124]

実施例7

本実施例6のように、補助羽根を振動羽根と反対側に設置することにより極間距離を短くしても相互の接触が発生しないという大きなメリットがある。

また、このようなタイプの補助羽根と振動羽根を用いることにより実施例1や2のような固定電極を設けるスペースがはぶけるので、実施例6の電解槽の両端に振動撹拌電極をセットすることができた。

このような水素系-酸素系混合ガス発生手段を用いて実施例 6 の燃料電池を用いて発電 を行った。

なお、本実施例の水素系-酸素系混合ガスも前記表1に示す処理ガスと同様の組成と特 徴点を有していた。

[0125]

比較例1

実施例 6 の燃料電池に市販の水素ガスボンベより水素ガスを供給し、該燃料電池の空気口より空気を供給して、発電を行った。

[0126]

実施例6および7と比較例1の発電状況は、下記表のとおりである。

【表 2】

	燃料ガス 圧送量(リットル/分)	電圧 (V)	発生電流 (A)
比較例 1	1.2 ~ 1.3	24	2~3
実施例 6	1.2 ~ 1.3	24	2.5~4.5
実施例 7	2.0 ~ 2.5	24	5.0~9.0

[0127]

実施例8

実施例1において、燃料電池として図74に示す燃料電池を用いた以外は実施例1を繰り返した。

図74に示す構成の燃料電池は、「Nature」vol. 343, 8 Februa 出証特2004-3045728 rv 1990. 第547~548頁に記載されているものである。

固体電解質膜は、ガス透過性のイオン導電性薄膜(500nm以下)で白金製のガス透過性燃料極と白金製の空気極に挟まれており、燃料極はガス透過性になっている。

前記ガス透過性のイオン導電性薄膜としては、Al2O3・2H2Oの組成をもつ低密度ベーマイト型(γーAlOOH)無機材料を用いた。また、前記ガス透過性燃料極は、 多孔性の薄い導電性カーボンペーパーに粉末状白金をまぶして固定したものを用いた。

この実施例では、前記Nature記載の燃料電池に較べてほぼ $3\sim3$. 5 倍の電力が得られるのは驚くべきことであり、これは、振動撹拌手段を用いて得られた水素系ー酸素系混合ガスの特性である。

また、セラミック電解質層を中空層(空気層)におきかえて実験を行なったが、ほぼ同じ発電効率が得られた。

[0128]

実施例9

2001年6月29日、日経BP社発行、日経メカニカル別冊、「燃料電池開発最前線」の「自動車、携帯機器、家庭電源が替る」第68~69頁とくに図44に示されているManhattan Scientifics社の「Micro Fuel Cell」(図75に示す)を用いた。この電池のメタノール供給口にメタノールの代わりに本発明の水素系一酸素系混合ガス(生ガスの場合と処理ガスの場合の両方について実施)を供給し、空気供給口はシールして燃料電池を機能させた。

その結果、メタノールを燃料として用いた場合よりも良好な発電結果が得られた。

また、電解質層を中空層(空気層)におきかえて実験を行なったが、ほぼ同じ発電効率が得られた。

[0129]

実施例10

本実施例は、特開2002-280015号公報記載の単室型固体電解質型燃料電池に、炭化水素と空気の混合ガスを供給する代りに、本発明の水素系一酸素系混合ガス(生ガスの場合と処理ガスの場合の両方について実施)を供給することにより行い、0.5W/cm²の電力が得られた。

この単室型固体電解質型燃料電池の構成は、前記特開2002-280015号公報記載のとおりであるが、一応以下にそれを説明する。

この単室型固体電解質型燃料電池は、図76及び図77に示すように、円盤状の酸素イオン伝導性固体電解質の同一面に、それぞれ空気極及び燃料極を備える構成である。また、本単室型固体電解質型燃料電池は、アルミナ管中に収め、このアルミナ管にメタンと空気の混合気体を流通させた状態で使用する。

酸素イオン伝導性固体電解質は、 $La_{1-z}Sr_{z}Ga_{1-w}Mg_{w}O_{3-a}$ または $Ce_{1-y}Ln_{y}O_{2-a}$ を用いた。また、空気極は、ストロンチウムをドープした $Ln_{1-x}Sr_{x}$ CoO_{3±a} (前記 Ln_{j} (前記 Ln_{j} (新土類元素、特に La_{x} Sm、Gd またはYb) であり、とくに $Smo_{0.5}Sro_{0.5}CoO_{3±a}$ を用いた。更に、燃料極は、ニッケルと、サマリウムをドープした酸化セリウムの混合物($Ce_{1-y}Sm_{y}O_{2-a}$)とにパラジウムを 1 質量%添加した電極である。サマリウムをドープした酸化セリウムの混合物は、 $Ceo_{0.8}Smo_{0.2}O_{1.9}$ (SDC) を用いた。また、Ni とSDCの混合比は重量比で 7:3 とした。また、空気極及び燃料極は図 7 7 に示すように、所定の空隙ができるように、間隔を空けて設けられている。

この単室型固体電解質型燃料電池を次に示すように作製した。始めは、酸素イオン伝導性固体電解質の表面に燃料極を形成する。酸化ニッケル粉末とSDC粉末を所定量秤量し、適当な有機溶媒を用いて混合粉砕した後、所定量の酸化パラジウム粉末を加えて混合粉砕してペースト状の電極材を調節する。これを酸素イオン伝導性固体電解質上にスクリーン印刷し、1400℃にて焼き付け処理を行った。

次いで、酸素イオン伝導性固体電解質における燃料極が形成された面と同じ側に燃料極と所定の間隙を空けて空気極を形成する。Lni-xSrxCoO3(ここでは、Smo

. 5 S r $_0$. 5 C o O $_3$ $_4$ $_8$ を使用した。)を有機溶媒に溶解させて粉砕してペースト状の電極材を調節する。これを酸素イオン伝導性固体電解質の燃料極と反対側の面にスクリーン印刷し、9 0 0 $^{\circ}$ にて焼き付け処理を行った。

電極の間隔は 3×10^{-3} mとした。また、燃料極のP d添加量は5 w t %とし、酸素イオン伝導性固体電解質は、 \Box 7×10^{-3} m、厚さ 0. 3×10^{-3} m、表面粗さ R a 0. 0.6×10^{-6} mのものを用いた。

[0130]

実施例11

実施例1に使用した水素系-酸素系混合ガス発生手段を用い、発生した水素系-酸素系混合ガスを酸素分離器を用いて酸素ガスと水素ガスを分離し、実施例6で用いた燃料電池の燃料極側より前記水素ガスを、空気極側より前記酸素ガスを供給して発電を行った。なお、電解槽内のマイナス極とプラス極の間に隔膜を設け、発生するマイナス極側の水素を主成分とするガス成分、すなわち水素系ガスとプラス極側の酸素を主成分とするガス成分、すなわち酸素系ガスを発生段階から分離、捕集し、その水素ガスを燃料電池の燃料極に、酸素ガスを燃料電池の空気極に供給して発電を行っても全く同様の結果が得られた。これらの結果、市販の水素ボンベと酸素ボンベを用いて同様の発電を行った場合に較べて約5割アップの発電効率を示した。これは、水素ガスを主成分とするガス成分すなわち水素系ガス中のH、H3、HDおよびOHの存在が寄与しているものと推定するほかはない。

[0131]

実施例12

本実施例で使用した水素系-酸素系混合ガス発生手段の概略を図65~図67に示す。 (イ) 使用する振動撹拌手段

日本テクノ(株)商品名絶縁式超振動 α -撹拌機 α -3型

(図49に示す) 2台を電解槽中に振動羽根がそれぞれ

向き合うように設置

振動モータ:250W×200V×3相

(株)村上精機製作所製低周波振動モータ

商品名ユーラスバイブレーター

振動棒: SUS304製直径16mmのもの2本 振動羽根: SUS304製厚さ6mmのもの7枚

固定部材: SUS304製

弾性部材シート:商品名テフロン(登録商標)シート

前記絶縁式超振動 α - 撹拌機の一方をプラス極に、一方をマイナス極として使用し、両者の間には隔膜を設けて水素ガスを主成分とするガス成分、すなわち水素系ガスと酸素ガスを主成分とするガス成分、すなわち酸素系ガスをを別々に採取した。なお、振動羽根をプラス極として使用する場合にかぎり、SUS板に白金めっき被覆を設ける。

(ロ) 使用インバータ: (株) 中央製作所製

50Hzに調整して使用

- (ハ) 使用整流器 (振動モータ用):富士電機 (株) 商品名FVR-C9S 、200V
- (二)電解槽:SUS304製(内面に塩化ビニル樹脂被覆したもの) 内径700mm×500mm×500mm (H) 蓋部材はSUS304である。
- (ホ) 蓋部材と振動棒との間のシール (図68参照)

振動モータの振動軸への振動によってもガス漏れが発生しないようシリコン充填によりシールを完全にした。

(へ) 水素系一酸素系混合ガスを電解槽から燃料電池に導くに当っては、水素ガスを主成分とするガス成分すなわち水素系ガスと酸素ガスを主成分とするガス成分すなわち酸素系ガスを分離し、いずれのガスも図59の安全装置を通し、水素ガスを主成分とするガス成分すなわち水素系ガスは実施例6の燃料電池の燃料極側に、酸素ガスを主成・

分とするガス成分すなわち酸素系ガスは実施例 6 の燃料電池の空気極側に供給して発電を行った。

一方、比較のために、市販の水素ガスボンベの水素ガスを実施例 6 の燃料電池の燃料極側に供給し、空気極側には空気を供給して発電を行った。

比較例のものに較べて本実施例のものの発電効率は約50%アップしていた。

これは、本実施例で得られた水素ガスを主成分とするガス成分すなわち水素系ガスがH、H3、HDおよびOHを微量ながら含有しているという本発明ガスの特徴点を備えている(分析結果からみて)ことに基因するものと考えられる。

また、それぞれの単セルにおける電解質層を中空層にかえて実験を行なったが、ほぼ同様の発電効果が得られた。

[0132]

実施例13

図62~図64に示す振動撹拌手段を用いた。

(イ) 使用する振動撹拌手段

振動モータ: 75W×200V×3相

(株) 村上精機工作所製

ユーラスバイブレーター2極型KEE-1-2B

振動棒:チタン製直径16mmのもの2本 振動羽根:チタン製厚さ6mmのもの4枚

羽根の角度は水平面から15°に下向き傾斜

(口) 固定電極

プラス極:ステンレス板に白金めっき被膜したもの 8枚

マイナス極:ステンレス板

9枚

- (ハ) 使用インバータ:富士電機 (株) 製商品名FVR-C9S 42Hzで作動
- (二)使用整流器(振動モーター用):中央製作所製Power Master、200V
- (ホ)電解槽:SUS304製(ただし内面にポリカーボネート被覆をしたもの) 内径320mm×220mm×400mm(H) (当然密閉蓋使用)
- (へ) 蓋部材と振動棒との間のシール (図68参照)

上下を合成ゴムでパッキングし、すき間にはシリコーン充填により密封。

(ト)水素系-酸素系混合ガスを電解槽から燃料電池に導くに当っては、図72のシステムを

用いた。なお、発生ガスを測定するため、1部は図72のシステムを通さず生ガスとして回収し、他の1部は図72のシステムを追加した処理ガスとして回収し、分析に供した。

(チ) 使用電解液:蒸留水にKOHを加え、20重量%水溶液として用いた。 40℃で電気分解を行い、消費された水は逐次補給した。

得られたガスの分析結果は、前記表1に示したとおりである。

(リ) 燃料電池の構造と使用法

実施例1で用いた燃料電池をそのまま利用した。その結果は、実施例1とほぼ同様の結果が得られた。

[0133]

実施例14

図65~67の振動撹拌手段を用い、実施例13と同様にして水の電気分解を行い、本発明の水素系-酸素系混合ガスを製造した。得られた混合ガスを分析した結果は、前記表1の組成とほぼ同様であった。

【図面の簡単な説明】

[0134]

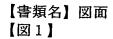
- 【図1】図1は、本発明による水素系-酸素系混合ガス発生手段の1例を示す断面図である。
- 【図2】図2は、図1の水素系-酸素系混合ガス発生手段の平面図である。
- 【図3】図3は、図1の手段の側面図である。
- 【図4】図4は、本発明による水素系-酸素系混合ガス発生手段の他の1例を示す断面図である。
- 【図5】図5は、図4の手段の平面図である。
- 【図6】図6は、図4の手段の断面図である。
- 【図7】図7は、図1または図4の手段の部分拡大断面図である。
- 【図8】図8Aは、電極群の構成を示す斜視図である。 図8Bは、電極群の構成を示す正面図である。
- 【図9】図9Aは、電極群を構成する絶縁体枠を示す正面図である。 図9Bは、電極群を構成する電極を示す正面図である。
- 【図10】図10は、図4の手段の部分拡大平面図である。
- 【図11】図11は、図1、図4の手段の振動部材への振動棒の取り付け部の拡大断面図である。
- 【図12】図12は、振動部材への振動棒の取り付け部の変形例を示す拡大断面図である。
- 【図13】図13は、図1、図4の手段の振動棒への振動羽根の取り付け部の拡大断面図である。
- 【図14】図14は、振動羽根の長さとしなりの程度との関係を示すグラフである。
- 【図15】図15は、振動撹拌手段の変形例を示す断面図である。
- 【図16】図16は、振動撹拌手段の変形例を示す断面図である。
- 【図17】図17は、振動撹拌手段の変形例を示す断面図である。
- 【図18】図18は、振動撹拌手段の変形例を示す断面図である。
- 【図19】図19は、振動撹拌手段の変形例を示す断面図である。
- 【図20】図20は、本発明による水素系-酸素系混合ガス発生手段を構成する振動 撹拌手段の電解槽への取り付けの形態を示す断面図である。
- 【図21】図21は、図20に示される振動撹拌手段の断面図である。
- 【図22】図22は、図20に示される振動撹拌手段の平面図である。
- 【図23】図23A~23Cは、積層体の平面図である。
- 【図24】図24A、24Bは、積層体による電解槽の閉塞の様子を示す断面図である。
- 【図25】図25A~25Eは、積層体の断面図である。
- 【図26】図26は、振動撹拌手段の変形例を示す断面図である。
- 【図27】図27は、本発明による水素系-酸素系混合ガス発生手段の1例を示す断面図である。
- 【図28】図28は、図27の手段の断面図である。
- 【図29】図29は、図27の手段の平面図である。
- 【図30】図30は、振動棒の電気的絶縁領域の近傍を示す部分拡大断面図である。
- 【図31】図31は、振動棒の電気的絶縁領域の斜視図である。
- 【図32】図32は、振動棒の電気的絶縁領域の平面図である。
- 【図33】図33は、絶縁式振動撹拌手段の側面図である。
- 【図34】図34は、絶縁式振動撹拌手段の断面図である。
- 【図35】図35は、絶縁式振動撹拌手段の断面図である。
- 【図36】図36は、振動羽根の近傍を示す断面図である。
- 【図37】図37は、電極用補助羽根を示す図である。
- 【図38】図38は、絶縁式振動撹拌手段の断面図である。
- 【図39】図39は、絶縁式振動撹拌手段の断面図である。
- 【図40】図40は、本発明による水素系-酸素系混合ガス発生手段の1例を示す断

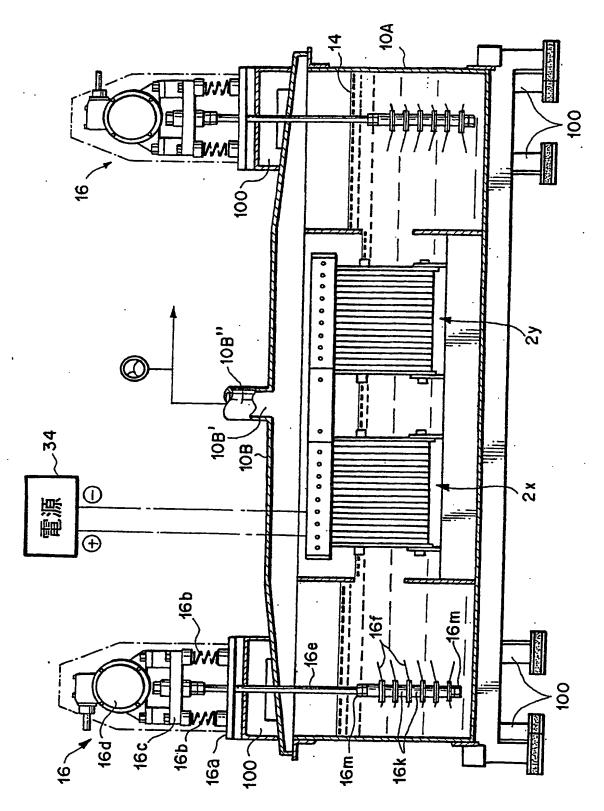
面図である。

- 【図41】図41は、図40の手段の断面図である。
- 【図42】図42は、図40の手段の平面図である。
- 【図43】図43は、本発明による水素系-酸素系混合ガス発生手段の1例を示す部分断面図である。
- 【図44】図44は、図43の水素系-酸素系混合ガス発生手段の断面図である。
- 【図45】図45は、絶縁式振動撹拌手段の1例を示す模式図である。
- 【図46】図46は、絶縁式振動撹拌手段の1例を示す模式図である。
- 【図47】図47は、絶縁式振動撹拌手段の1例を示す模式図である。
- 【図48】図48は、絶縁式振動撹拌手段の1例を示す部分断面図である。
- 【図49】図49は、図48の手段の部分側面図である。
- 【図50】図50は、絶縁式振動撹拌手段の1例を示す部分側面図である。
- 【図51】図51は、本発明による水素系-酸素系混合ガス発生手段の1例を示す断面図である。
- 【図52】図52は、本発明による水素系-酸素系混合ガス発生手段の1例を示す断面図である。
- 【図53】図53は、図52の手段の断面図である。
- 【図54】図54は、本発明による水素系-酸素系混合ガス発生手段の1例を示す断面図である。
- 【図55】図55は、図54の手段の断面図である。
- 【図56】図56は、電極部材を構成する円柱状チタン網ケースの斜視図である。
- 【図57】図57は、電極部材の正面図である。
- 【図58】図58A~58Eは、振動発生手段と振動撹拌部材との接続形態を示す模式図である。
- 【図59】図59は、本発明による水素系-酸素系混合ガス発生手段のガス捕集手段の一部を示す図である。
- 【図60】図60は、本発明の水素系-酸素系混合ガス発生手段から燃料電池の燃料極へ水素系-酸素系混合ガスを送る場合の安全装置の1例を示す。
- 【図61】図61は、蓋部材の変形例を示す斜視図である。
- 【図62】本発明の水素系-酸素系混合ガス発生手段の他の1例を示す断面図である
- 【図63】図62のX-X線断面図である。
- 【図64】図62の上面図である。
- 【図65】本発明の水素系-酸素系混合ガス発生手段の他の1例を示す断面図である
- 【図66】図65のX-X線断面図である。
- 【図67】図65の上面図である。
- 【図68】振動棒部分のシール(気密化)手段の1例を示す断面図である。
- 【図69】実施例1で利用した市販小型固体高分子型燃料電池の構成を示す図である
- 【図70】図69の構成を組み立てた燃料電池の外観を示す図である。
- 【図71】本発明の水素系-酸素系混合ガスを火口から15mmの位置においてとった火焔スペクトル図である。
- 【図72】水素系-酸素系混合ガスを用いるときの安全装置の1例を示す図である。
- 【図73】固体高分子電解質型燃料電池の1例を示す構成図である。
- 【図74】実施例4に用いた燃料電池の構造をモデル的に示す図である。
- 【図75】実施例9に転用したメタノール燃料電池の概略図を示す。
- 【図76】実施例10に転用した単室型固体酸化物型燃料電池の概略図を示す。
- 【図77】図76の部分拡大斜視図である。
- 【図78-1】図78-1は、表1のCガスの採取グラフの1部である。
- 【図78-2】図78-2は、表1のCガスの採取グラフの1部である。

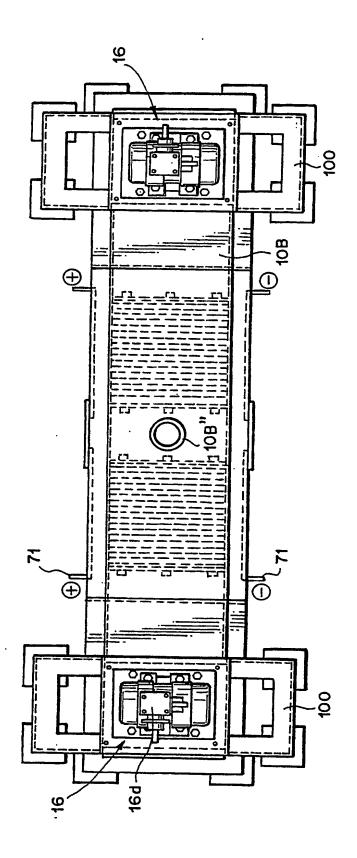
```
【図79-1】図79-1は、表1の(c)ガスの採取グラフの1部である。
   【図79-2】図79-2は、表1の(c)ガスの採取グラフの1部である。
  【図79-3】図79-3は、表1の(c)ガスの採取グラフの1部である。
  【図79-4】図79-4は、表1の(c)ガスの採取グラフの1部である。
【符号の説明】
 [0135]
 1 金属板
 1′
    金属板
 2 ゴム板
 2 a 上側ソリッドゴム層
 2 b スポンジゴム層
 2 c
   下側ソリッドゴム層
 2 x
    陽極部材
 2 y 陰極部材
 2′
    下側ゴム板
 3 積層体
 5
  貫通孔
 6 開口部
 10A 電解槽
 10B 蓋部材
10B'
      水素系一酸素系混合ガス取出口
10B"
      水素系一酸素系混合ガス採取管
10B'"シールポット
10C フレキシブル部材
10D 固定部材
14 電解液
16 振動撹拌手段
16a 基台
16b コイルバネ
16c 振動部材
16c′
    付加的振動部材
16d 振動モータ
16e 振動棒
16e'
     振動棒上部分
16e"
     絶縁領域
16e"′
      振動棒下部分
16f 振動羽根
16 f'
     電極用補助羽根 (振動補助羽根)
16f"
     陽極部材
16f'"
      陰極部材
16g 振動応力分散部材
16 h
    ワッシャ
1 6 i
    ナット
16 j
    振動羽根固定部材
16k スペーサリング
16p 弾性部材シート
16s 絶縁ブッシュ
1 6 t
    絶縁座金
1 6 u
    スペーサ
3 4 電源
```

- 35 インバータ
- 40 取り付け台
- 43 ガイド部材
- 70 絶縁体枠
- 71 電極
- 74 空孔
- 82 保持手段
- 86 陽極部材
- 112 防振ゴム
- 115 支持部材
- 116 ボルト
- 116e 導電性棒状体 (電極シャフト)
- 116 f" 陽極部材 (プラス電極)
- 116 f'" 陰極部材 (マイナス電極)
- 117 ナット
- 118 取付部材
- 119 ゴムリング
- 124 嵌合用穴
- 125 嵌合用穴
- 127 通電線
- 131 ボルト
- 132 ボルト
- 134 ロッド部分
- 136 電源
- 136′ フレキシブルシール部材
- 144 ガイド部材
- 145 ガイド部材
- 201 陽極主ブスバー
- 202 陰極主ブスバー

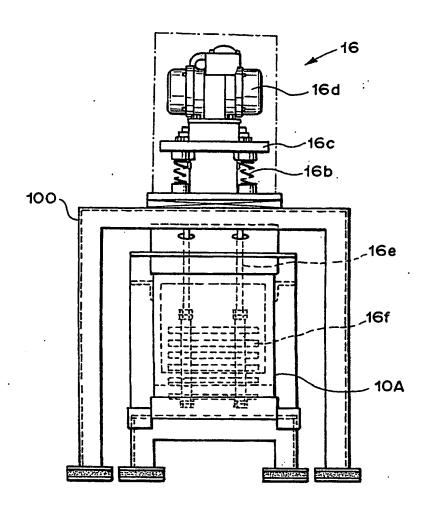




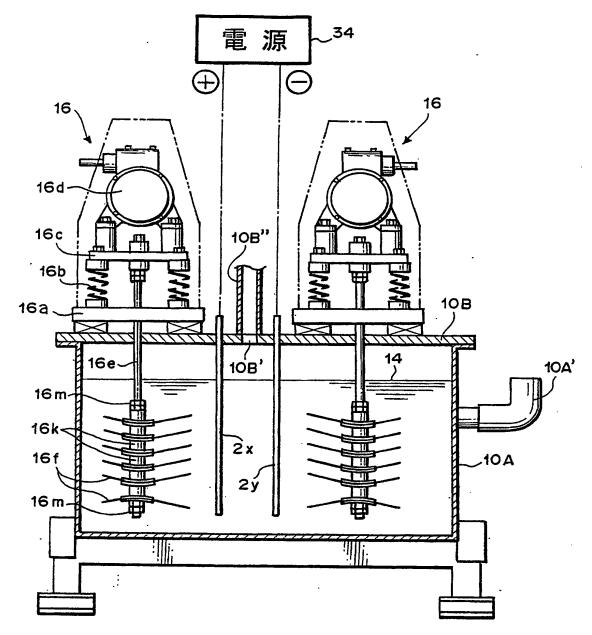




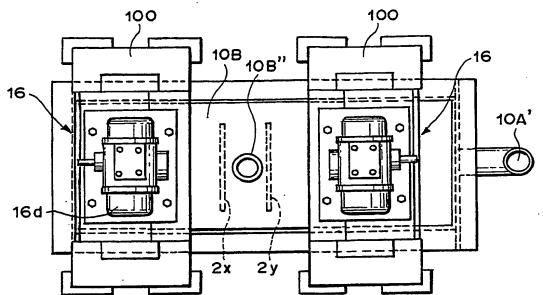
【図3】



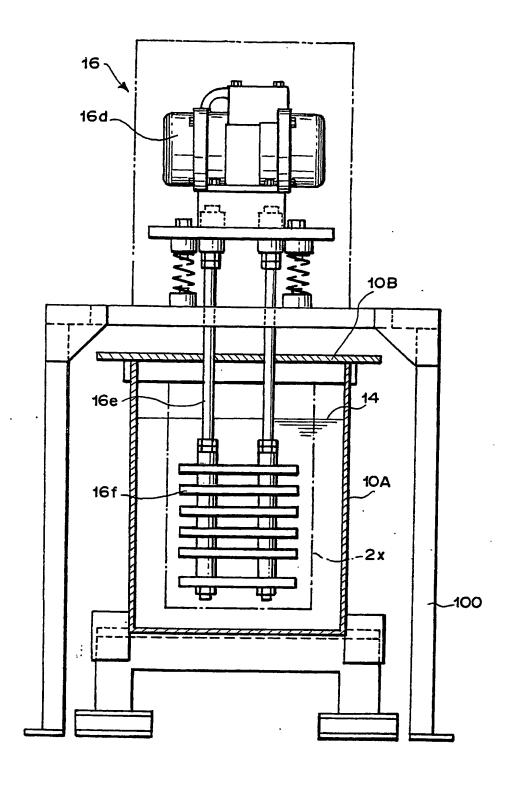




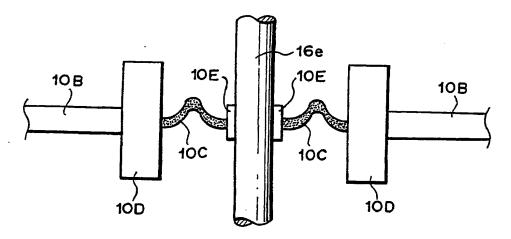




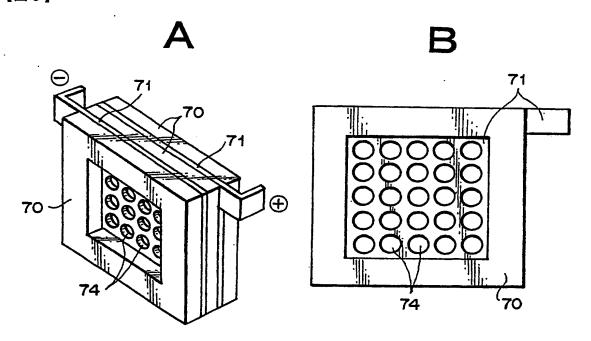




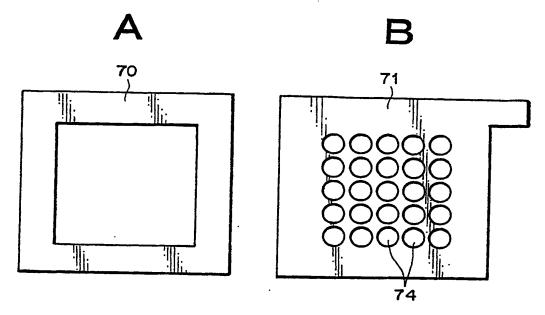
【図7】



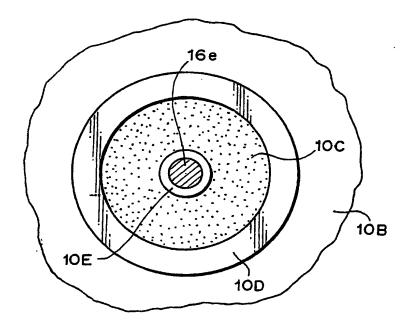
【図8】



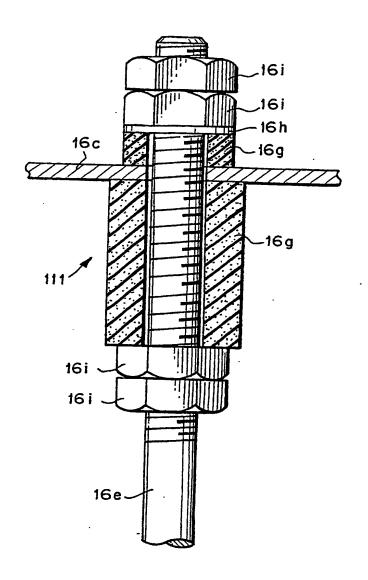




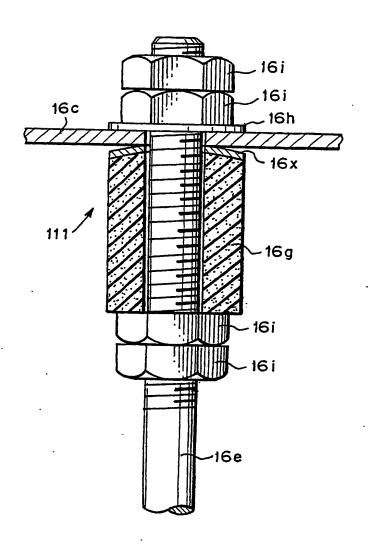
【図10】



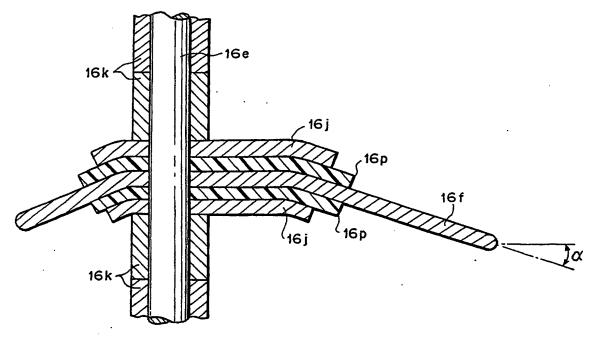
【図11】

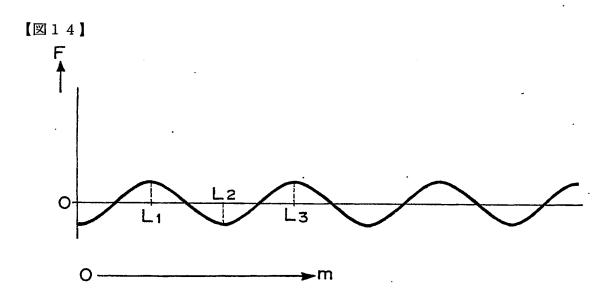




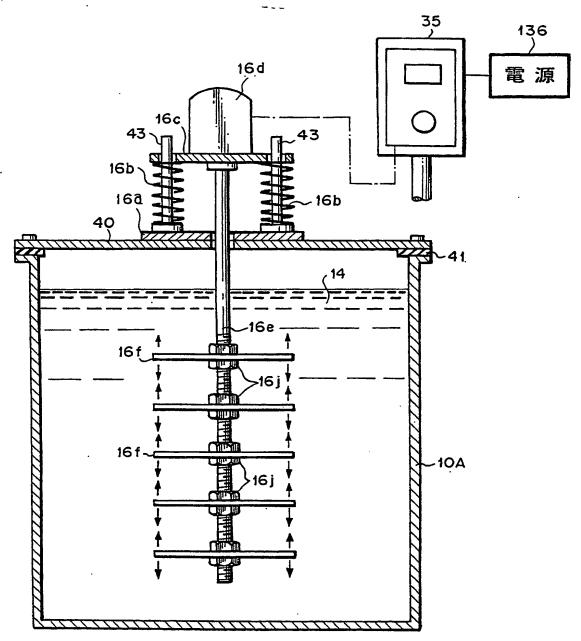


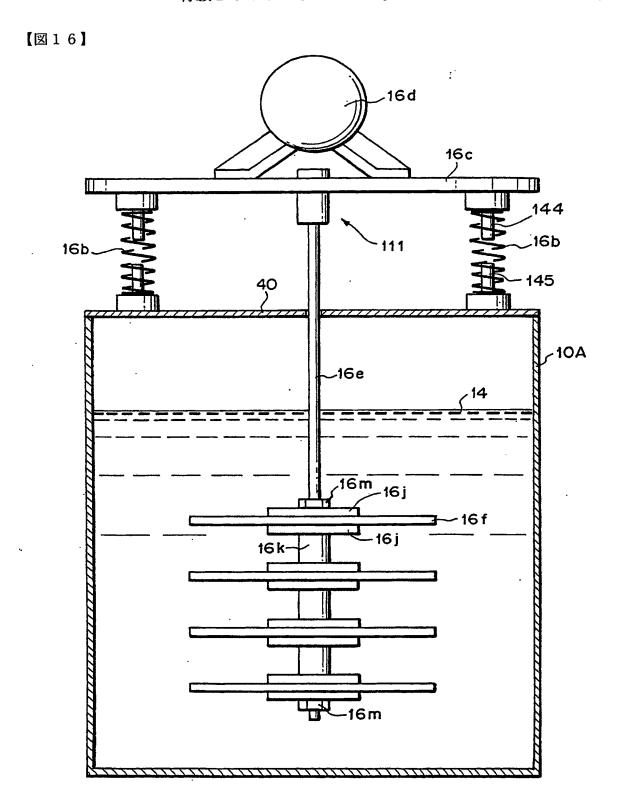




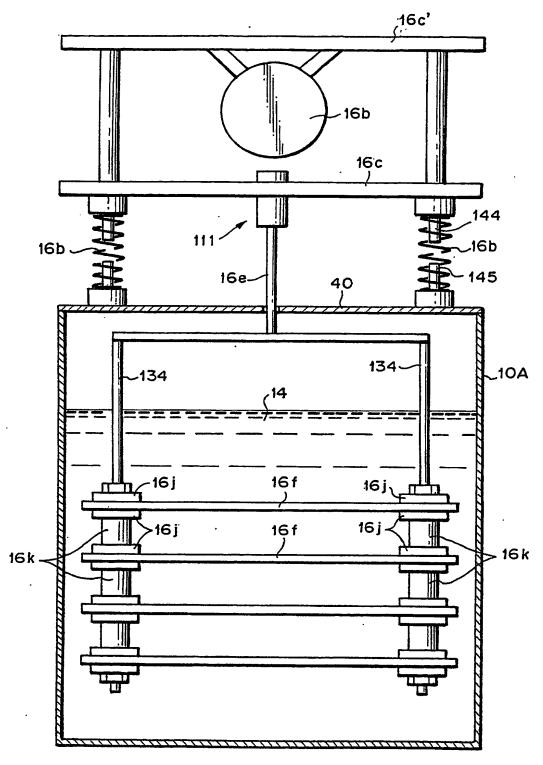


【図15】

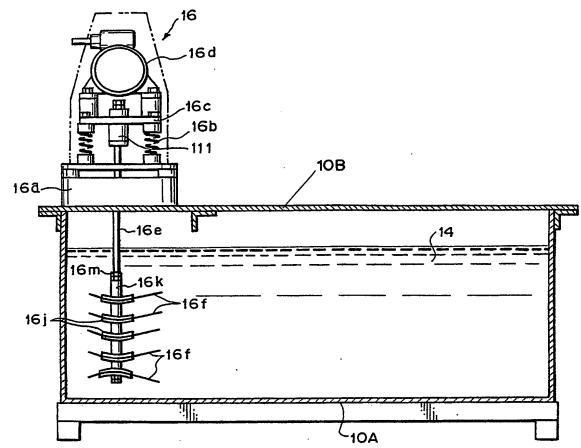




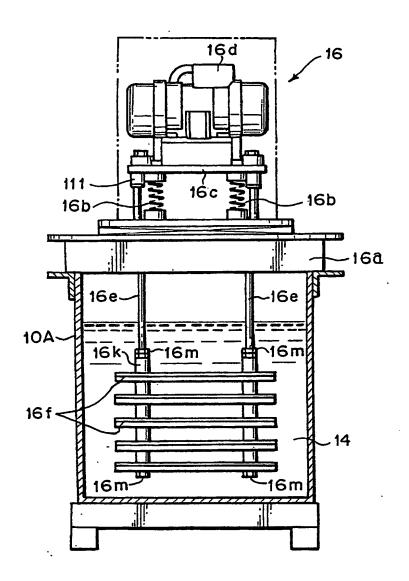




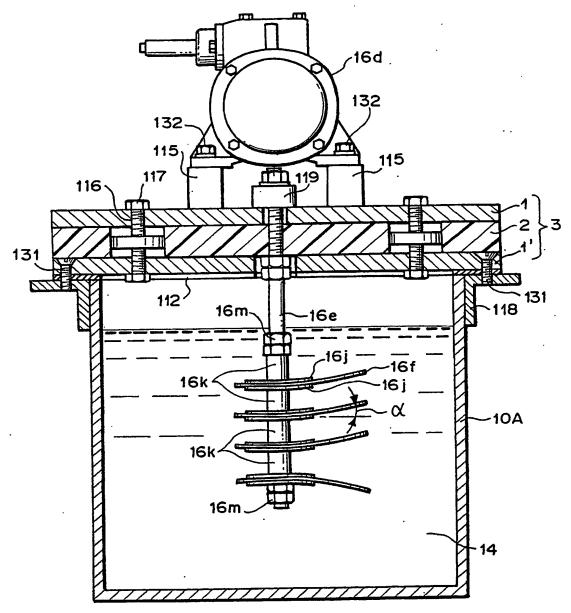




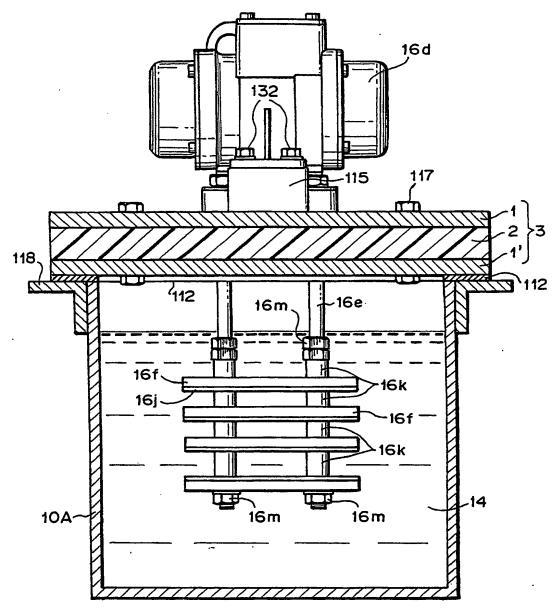




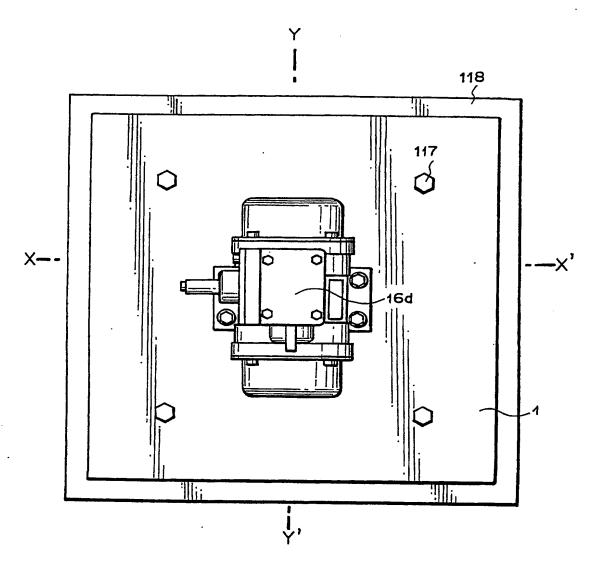
【図20】



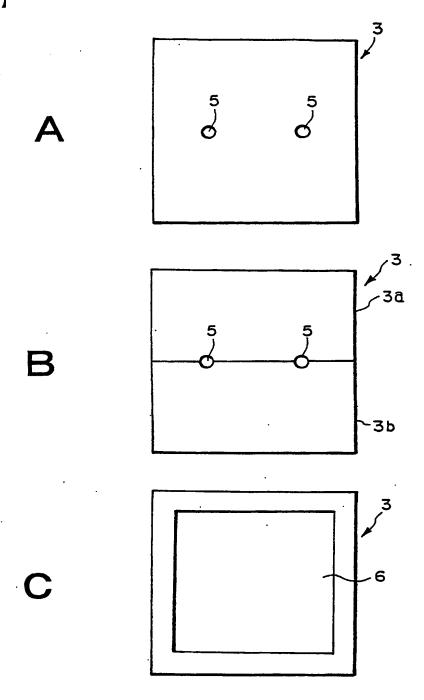




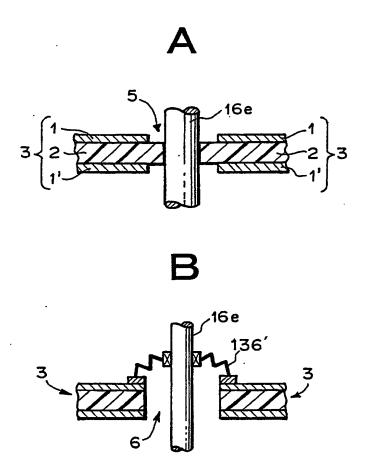




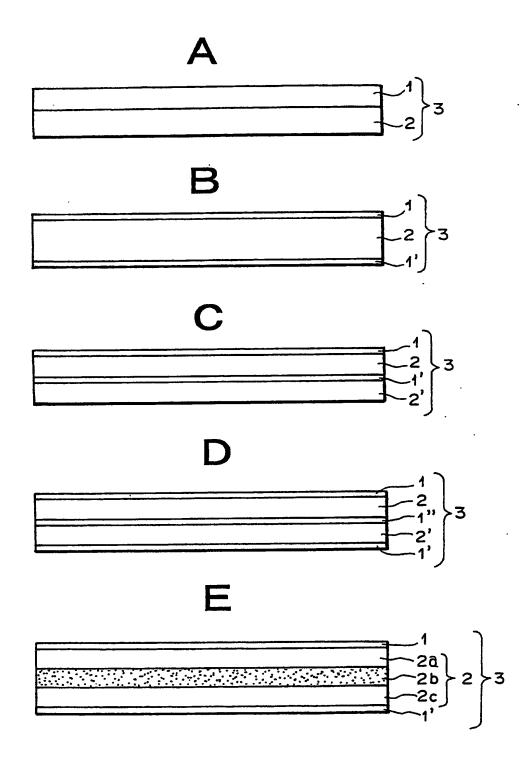
【図23】



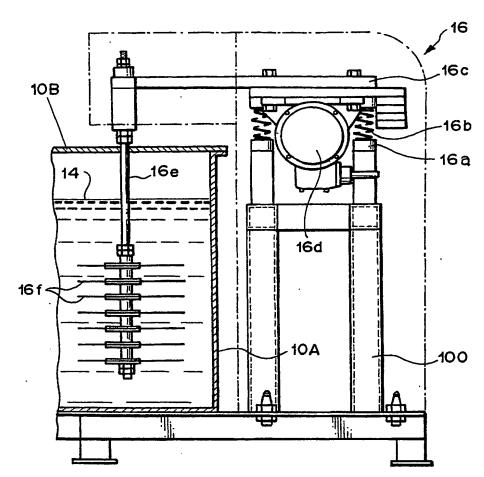
【図24】



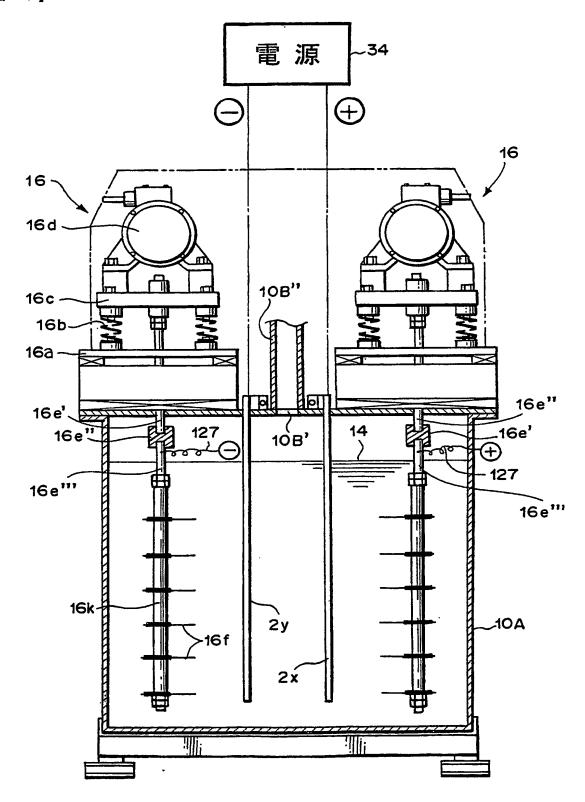
【図25】



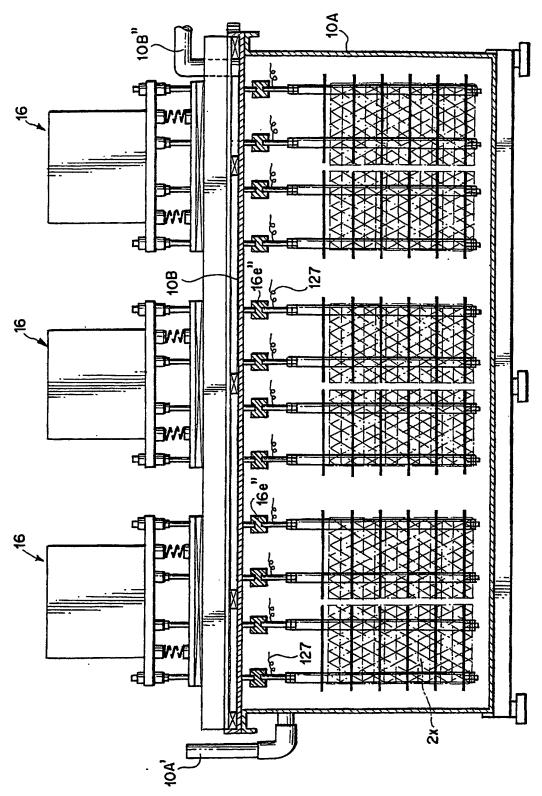




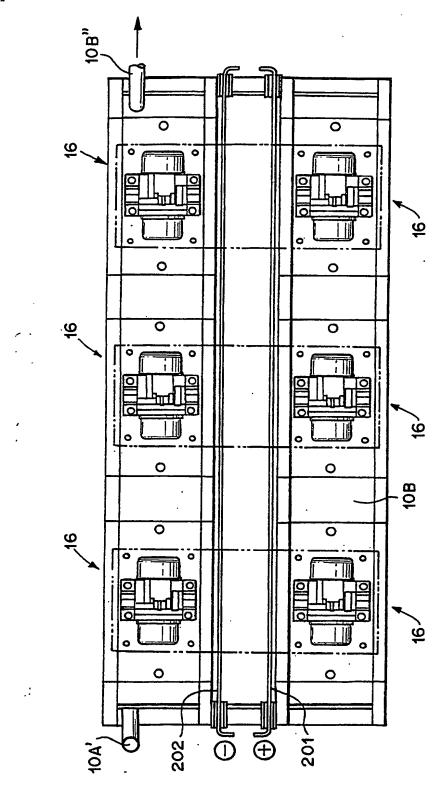
【図27】



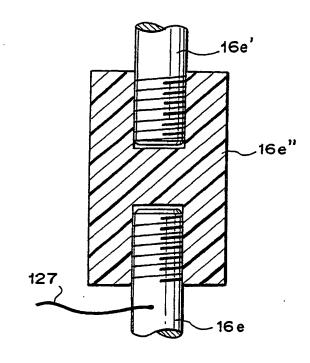




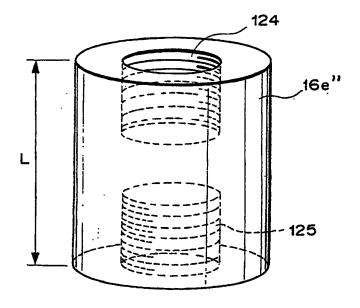




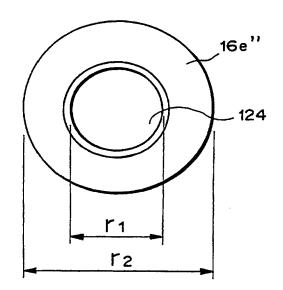




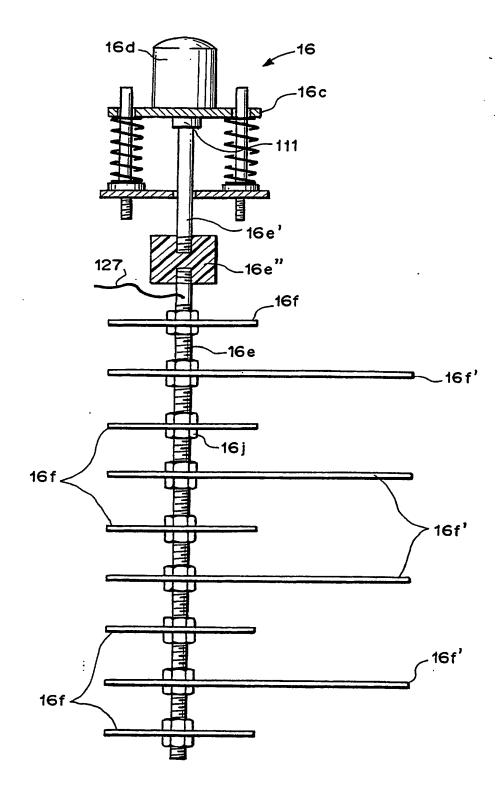
【図31】



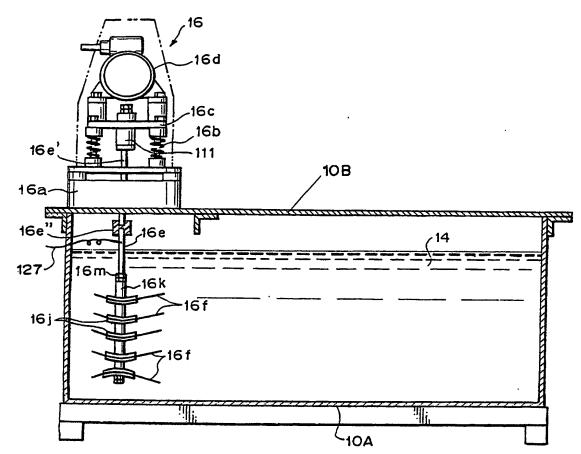
【図32】



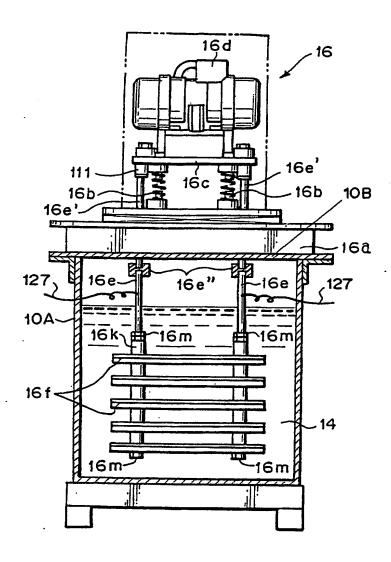
【図33】



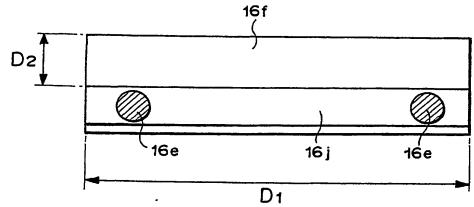




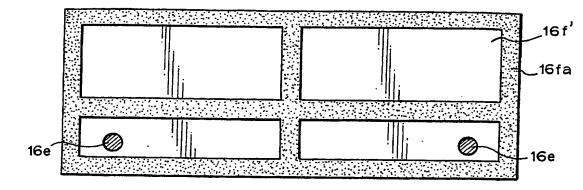




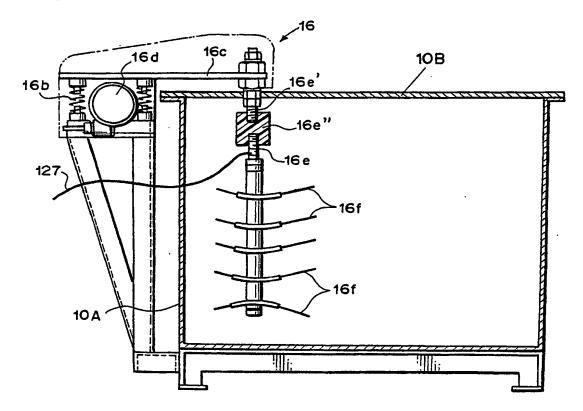
【図36】



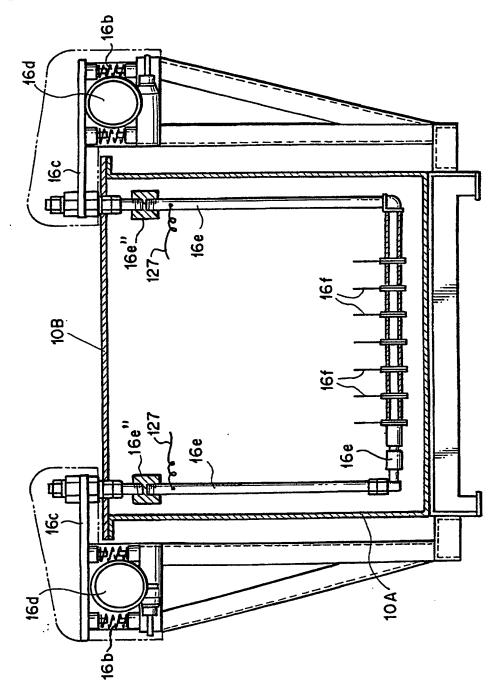


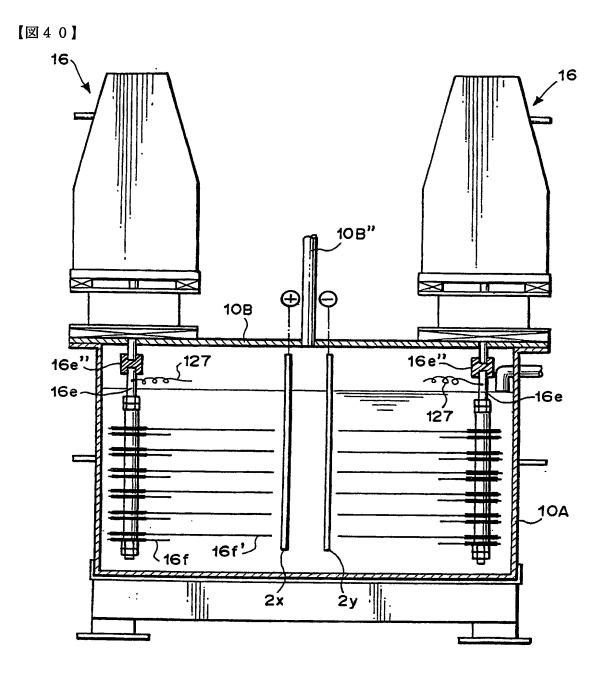


【図38】

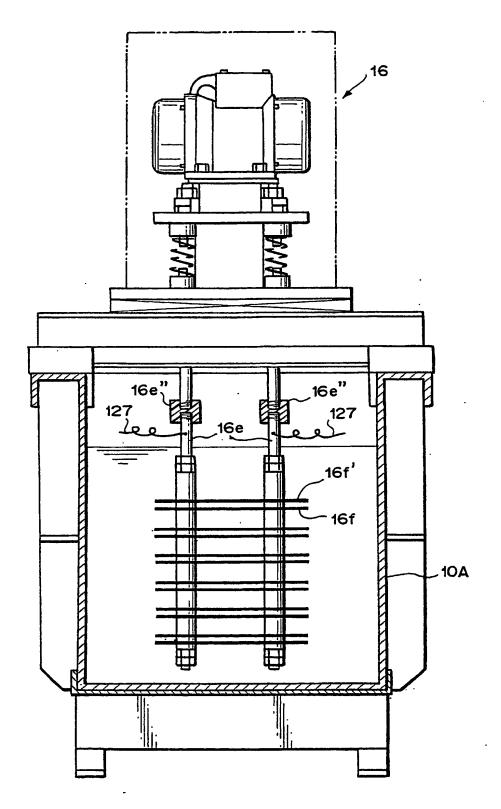


【図39】

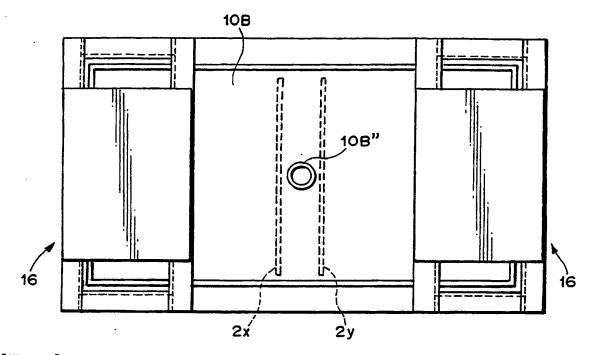




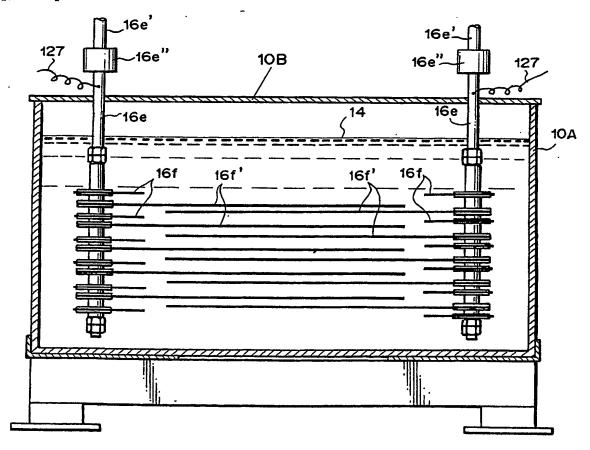




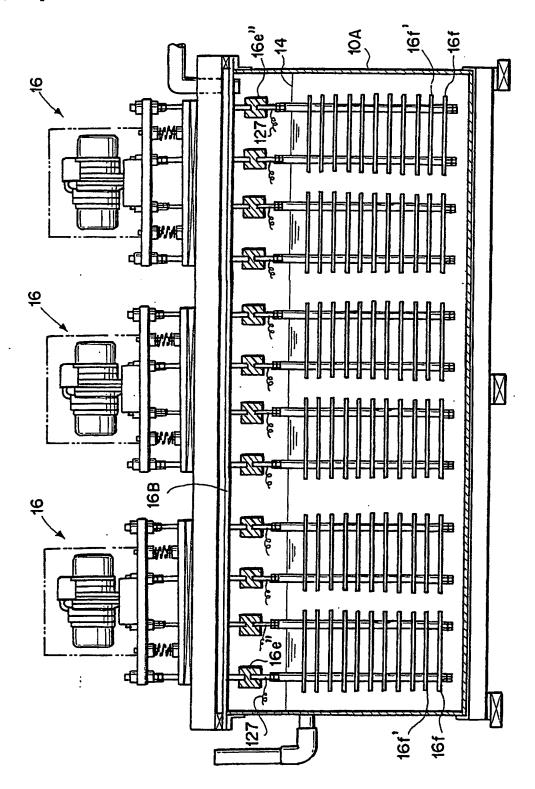




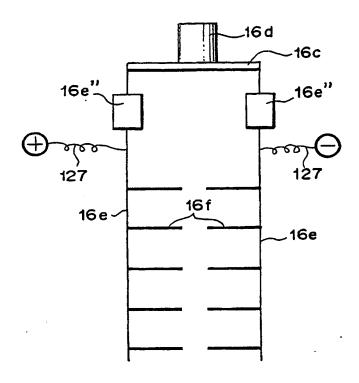
【図43】



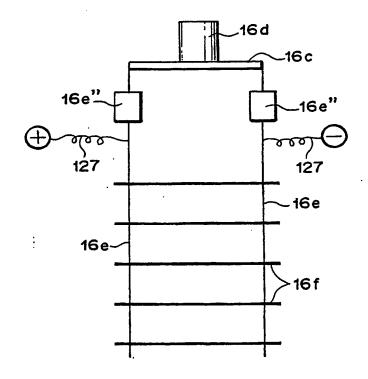
【図44】



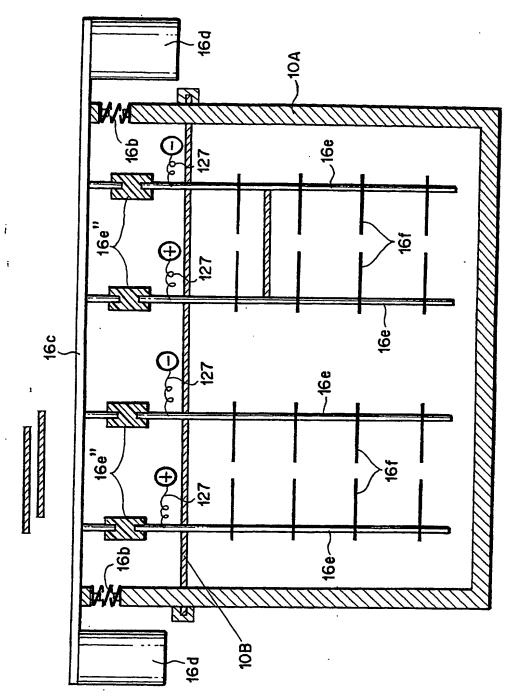
【図45】



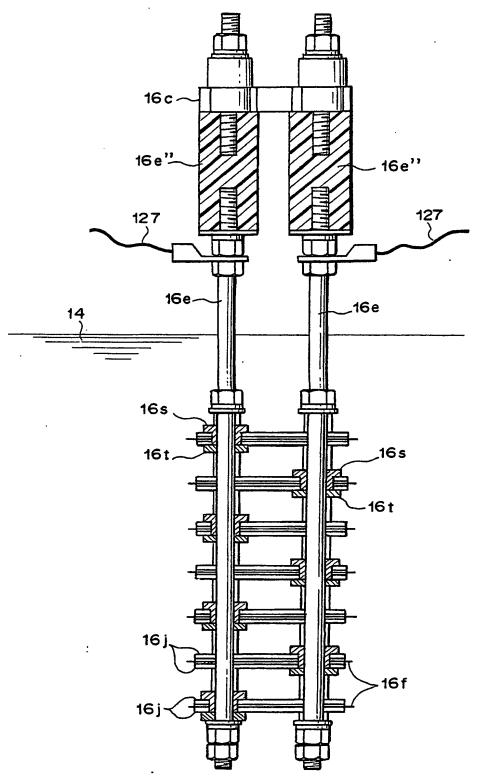
【図46】



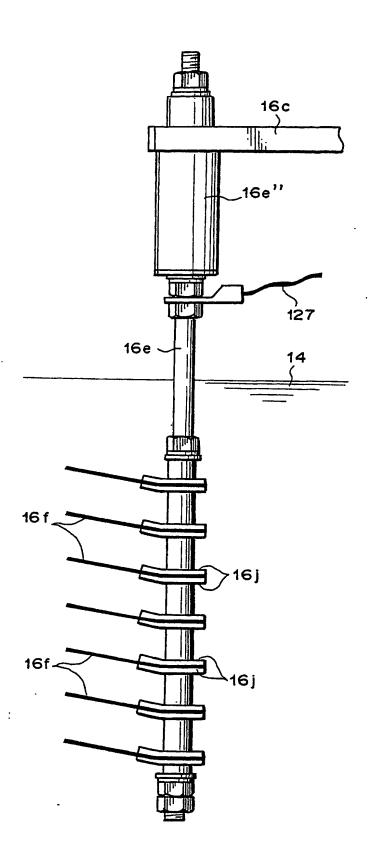




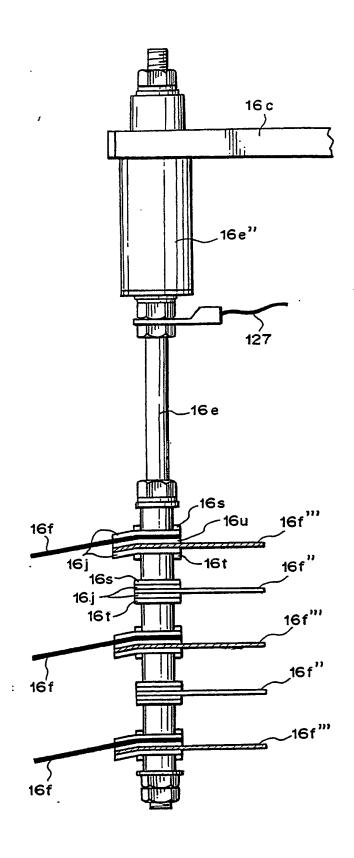


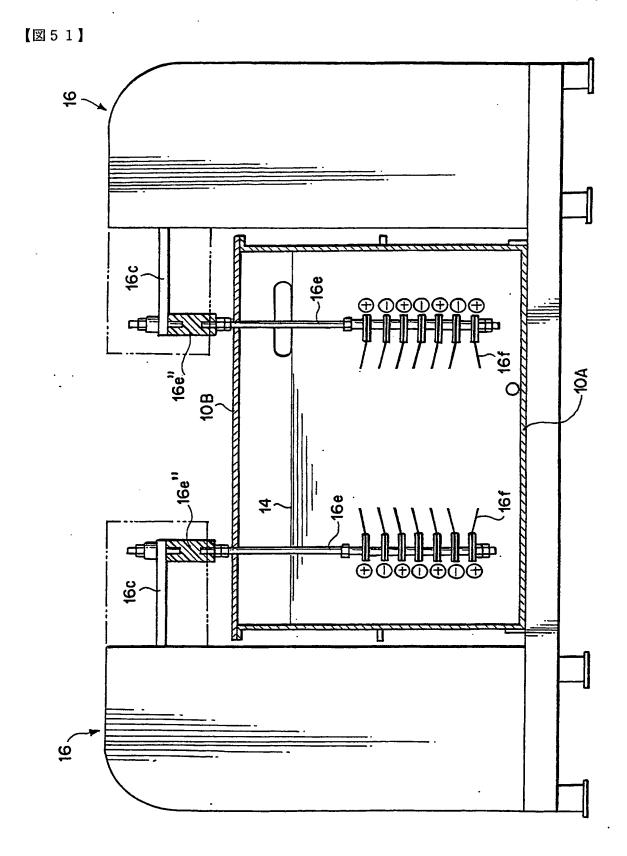




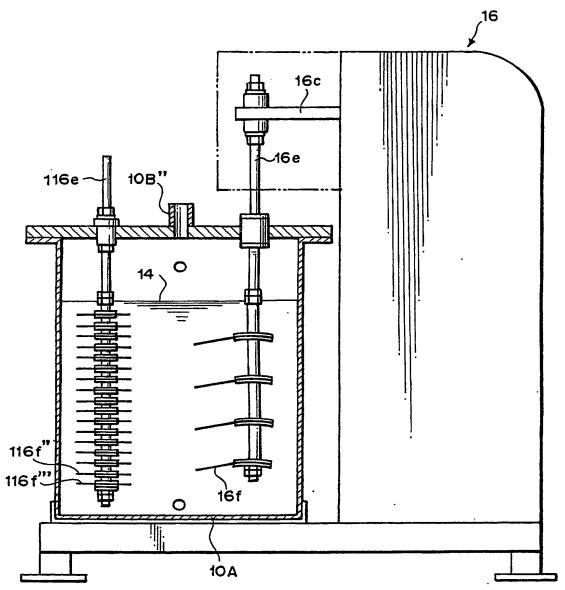


【図50】

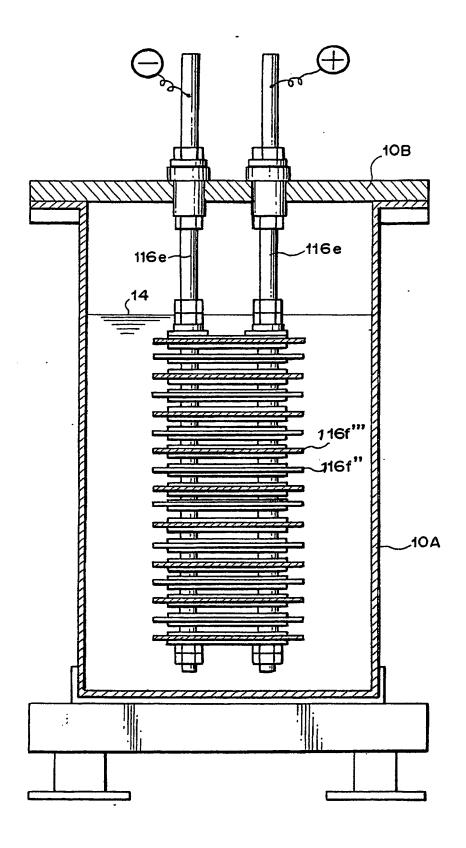




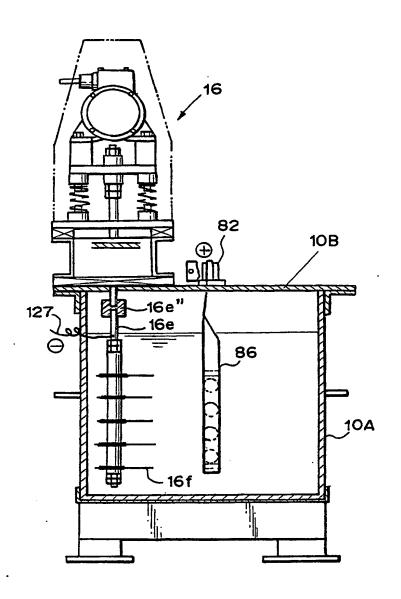




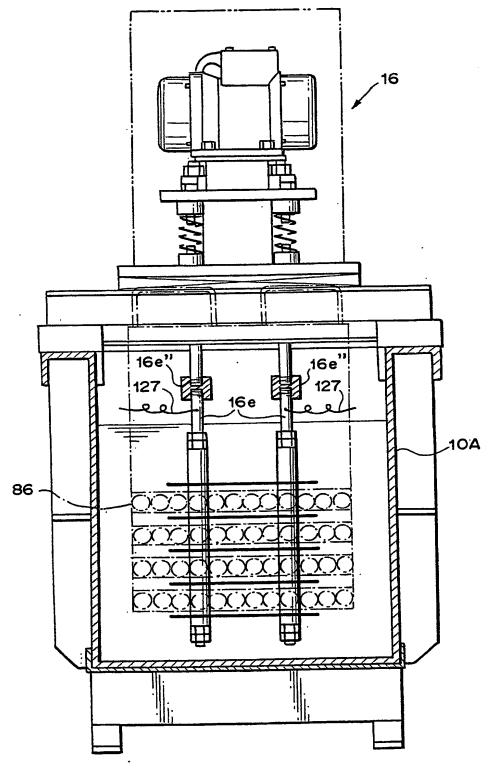




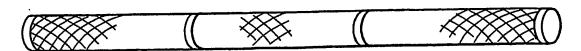




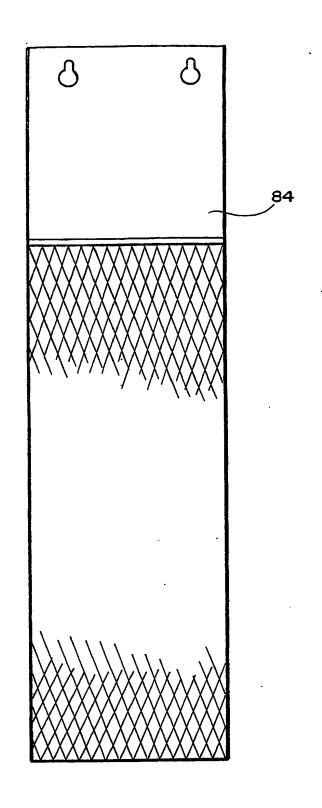
【図55】



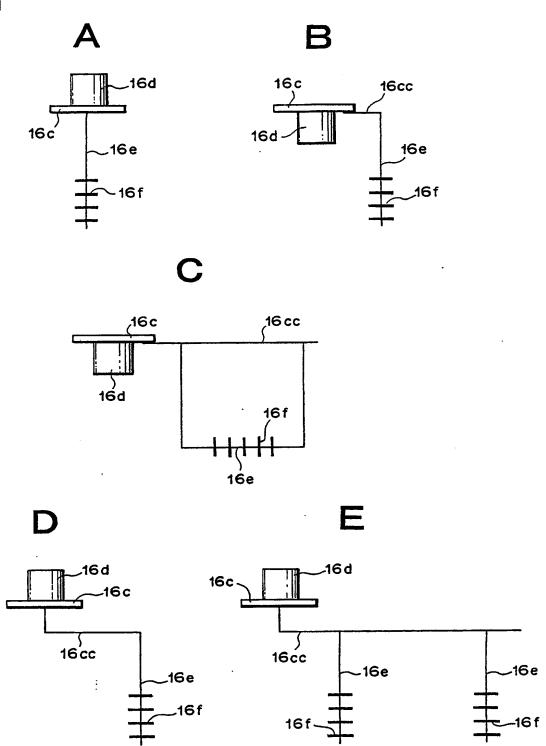
【図56】



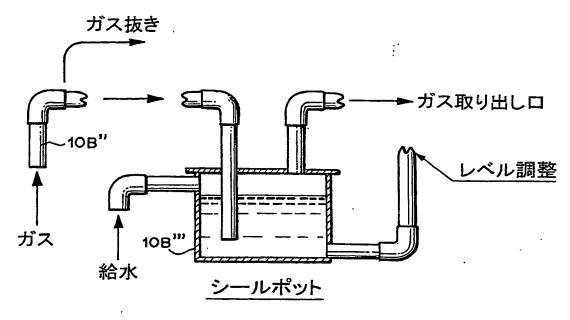




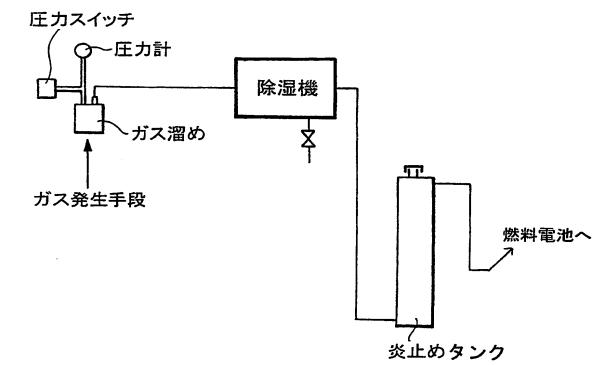
【図58】



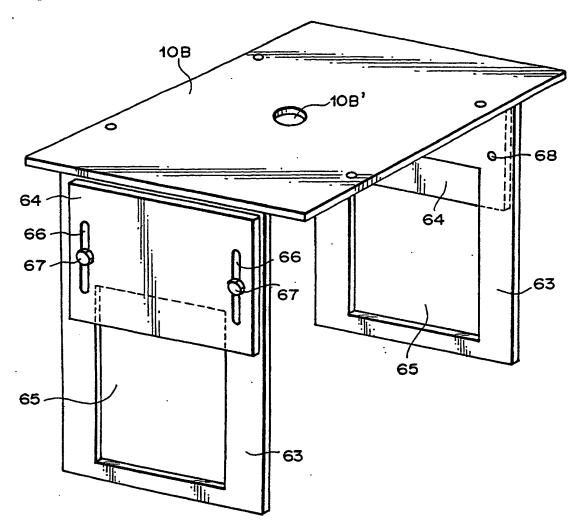




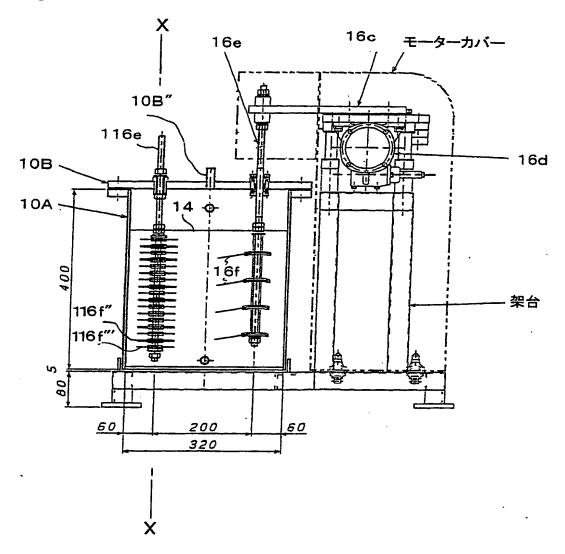
【図60】



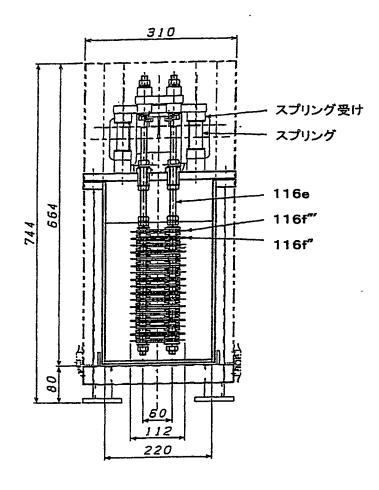
【図61】



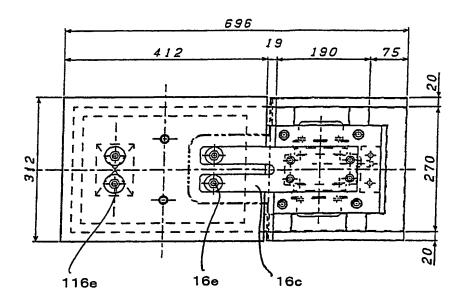




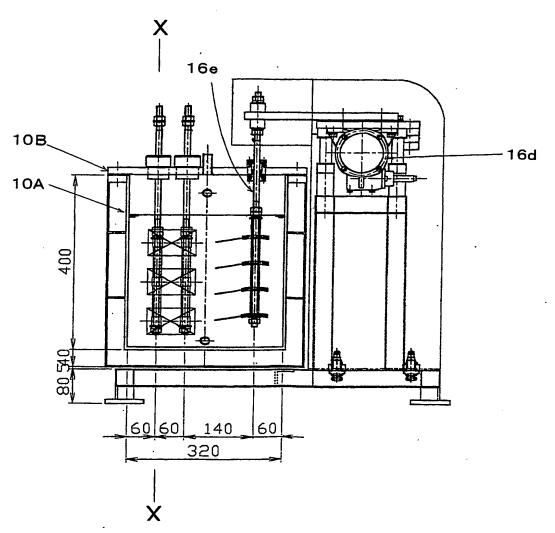
【図63】



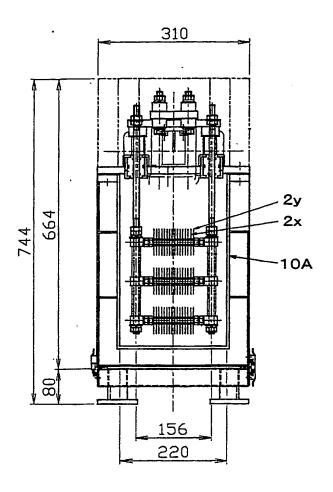
【図64】



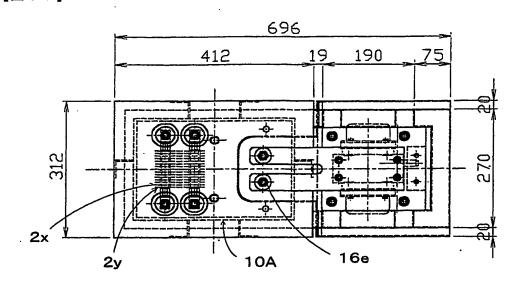




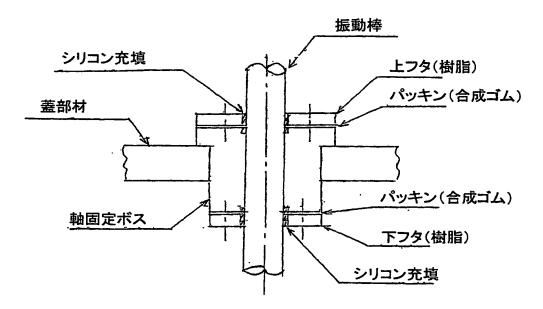
【図66】

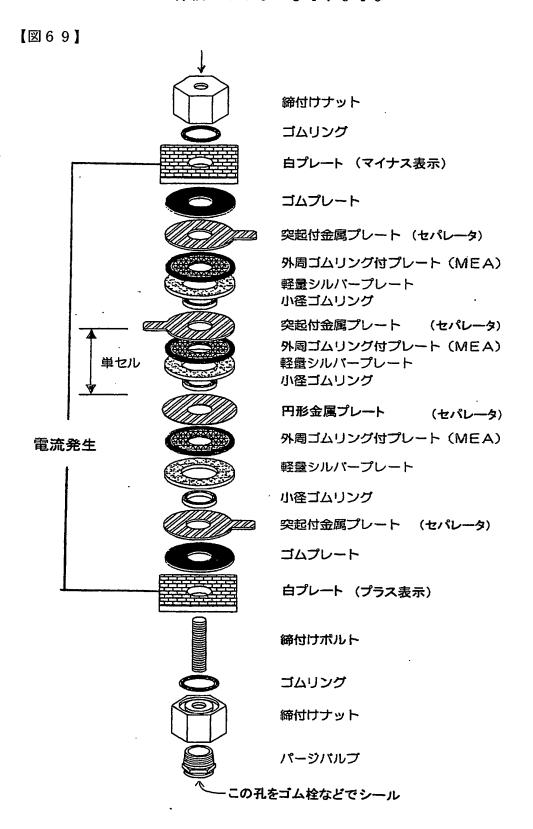


【図67】

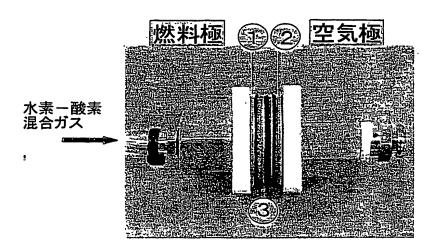


【図68】



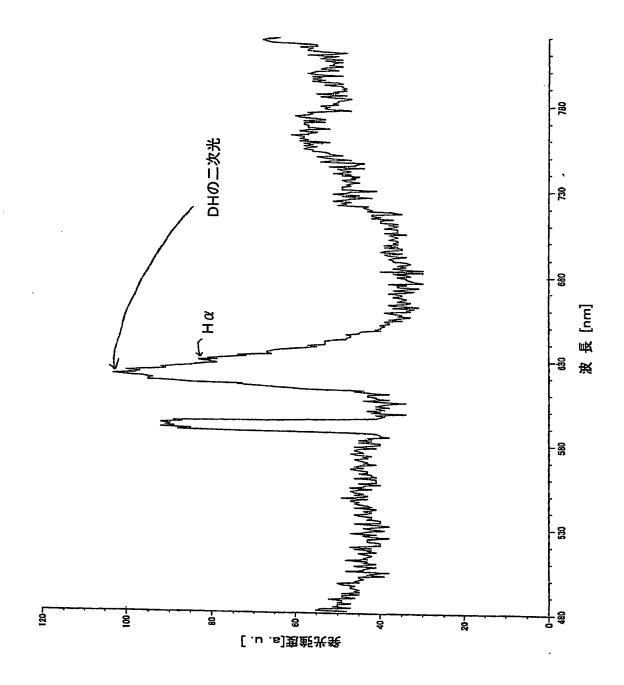


【図70】

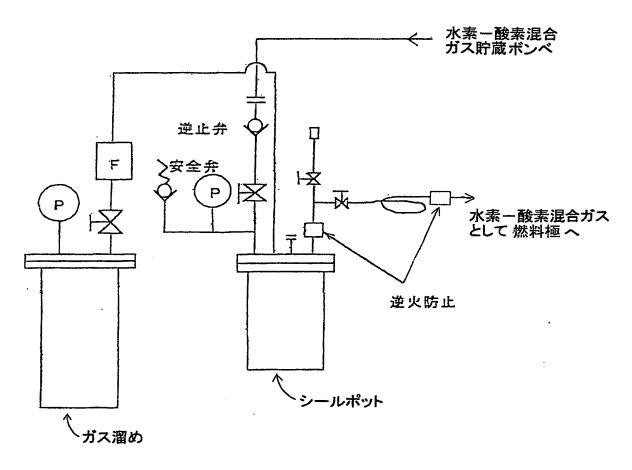




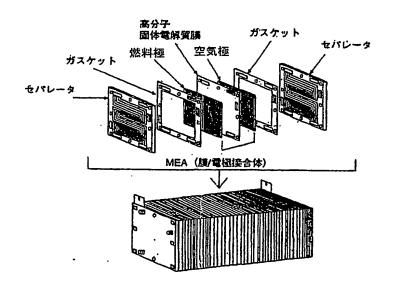
【図71】



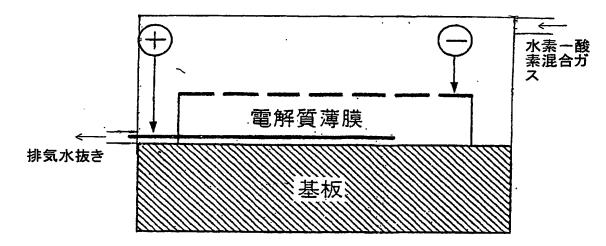
【図72】



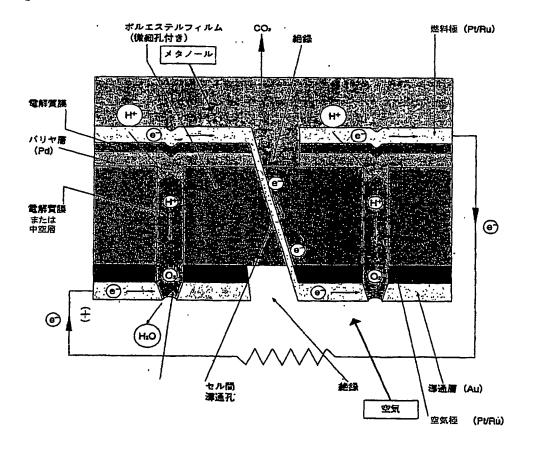
【図73】



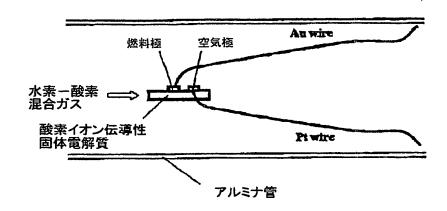




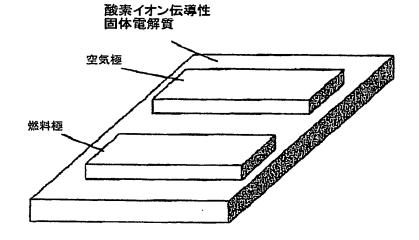
【図75】

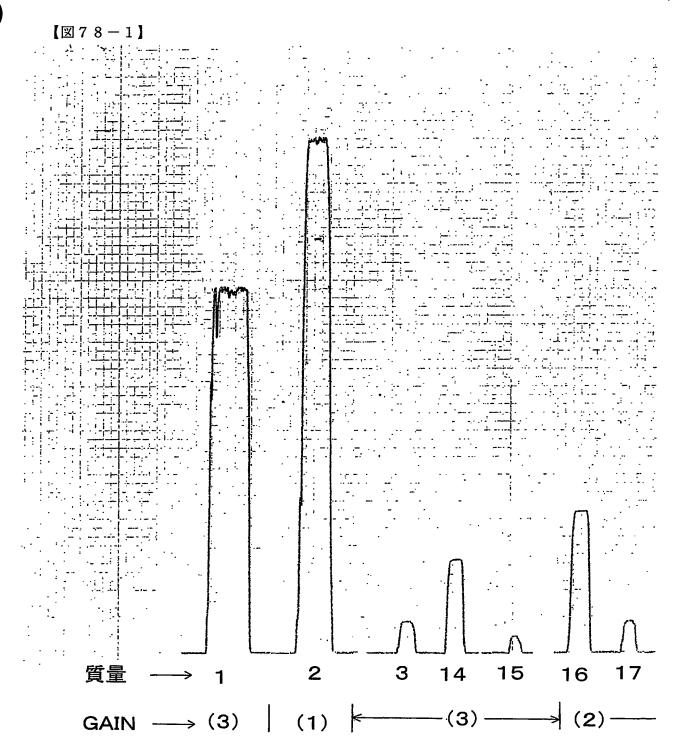


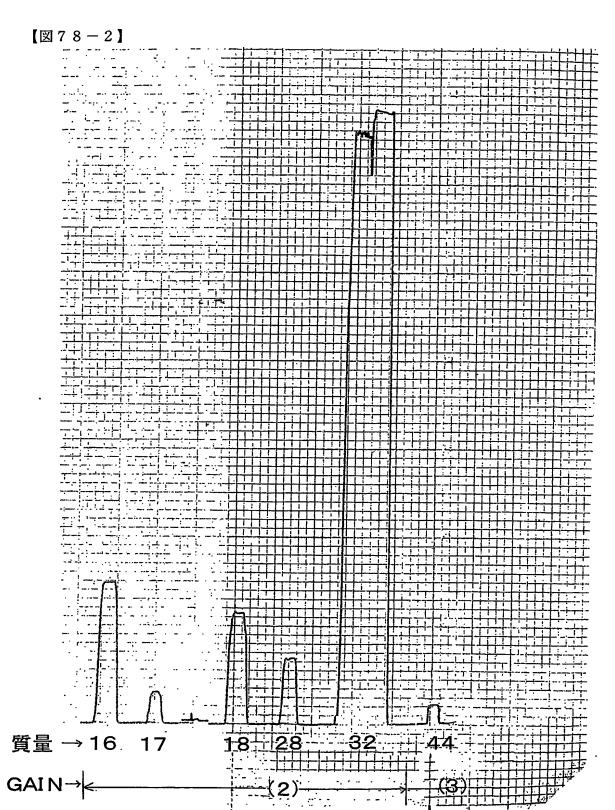
【図76】

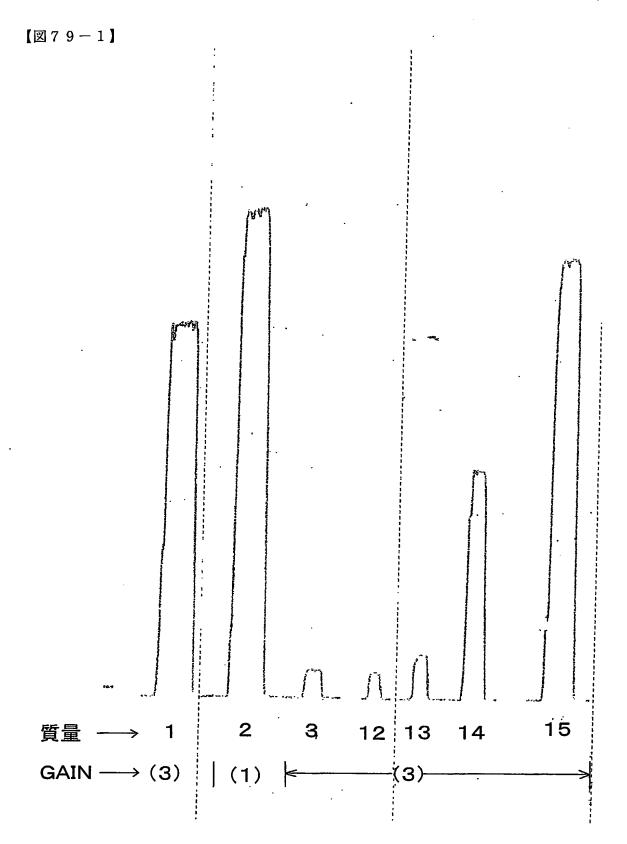


【図77】

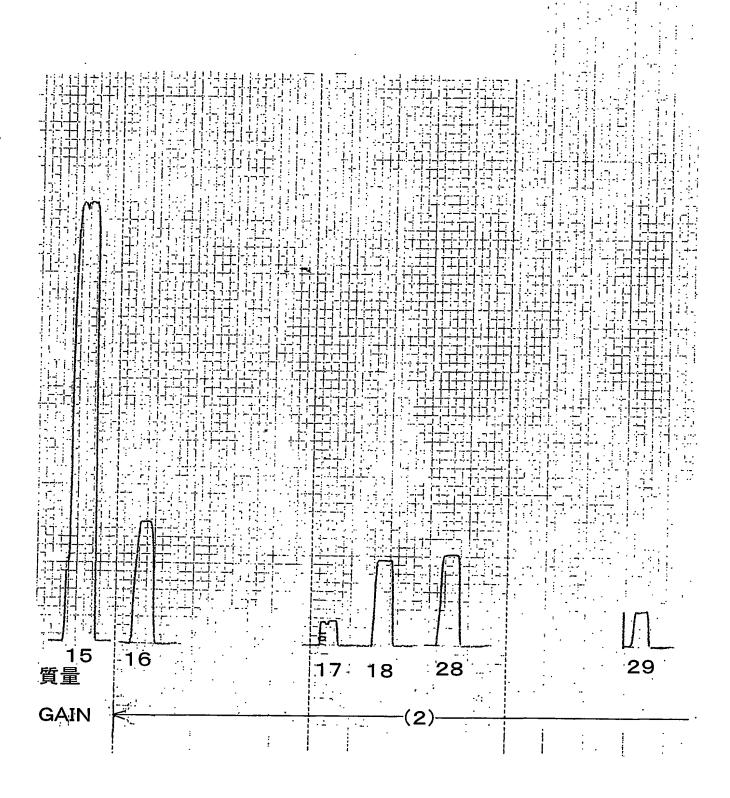


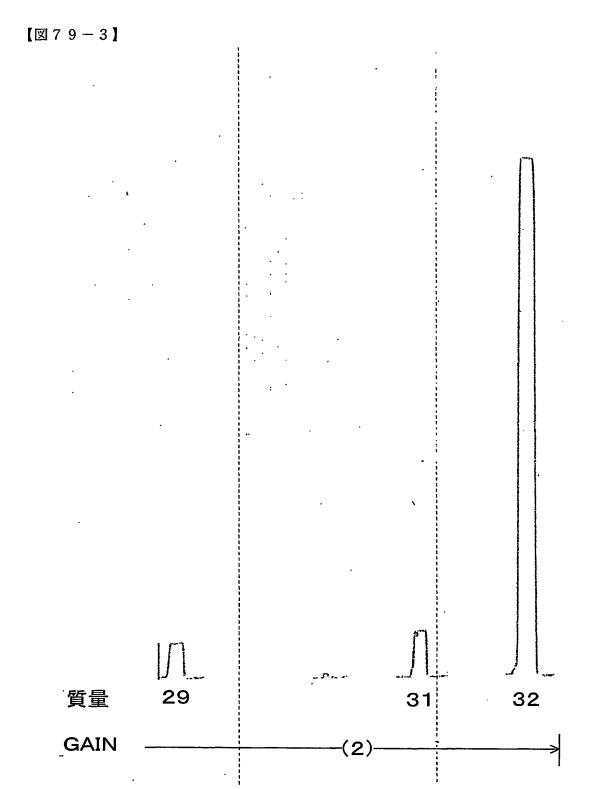




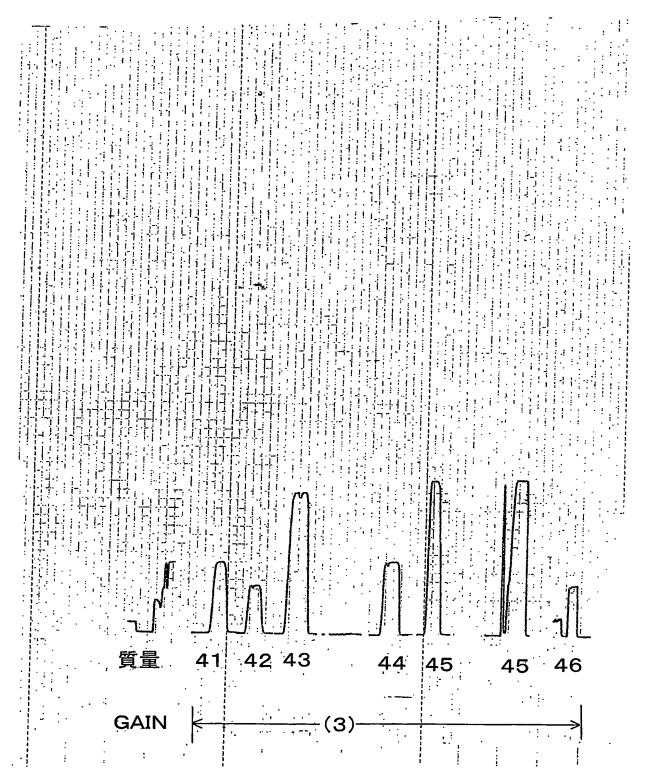


【図79-2】











【書類名】要約書

【要約】

【課題】

- 1. 新規な水素系ー酸素系混合ガスまたは水素系ガスおよびそれよりなる燃料電池用燃料の提供。
- 2. 新規な水素系-酸素系混合ガスまたは水素系ガスよりなる燃料電池用燃料の提供。
- 3. 電解質層を有さない新規な燃料電池の構造の提供
- 4. 振動撹拌手段を利用して製造した水素系ガスを用いた発電方法と燃料電池の提供。
- 5. 燃料電池の燃料として水素と酸素とをわざわざ分離して使用しないで、水素系ー酸素 系混合ガスのままで燃料極に供給して、あるいは燃料極と空気極の両方に供給して発電を 行う発電方法と燃料電池の提供。
- 6. 従来の水素ガスを燃料とした従来の燃料電池に比べてはるかに高い電力を発生させる発電方法と燃料電池の提供。
- 7. 電解質層を設けない燃料電池の提供。

【解決手段】 H、H2、H3 および/またはHD、OH、 1 6 OおよびO2 を含むことを特徴とする水素系一酸素系混合ガス。

【選択図】

なし

1/E



特願2003-347649

出願人履歴情報

識別番号

[392026224]

1. 変更年月日

1999年11月17日

[変更理由] 住 所

住所変更 東京都大田区久が原2丁目14番10号

氏 名 日本ラ

日本テクノ株式会社

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items	s checked:
☐ BLACK BORDERS	
☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES	
☐ FADED TEXT OR DRAWING	
☑ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING	
☐ SKEWED/SLANTED IMAGES	
☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS	. ·
GRAY SCALE DOCUMENTS	
☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT	
☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUAI	LITY
OTHER:	

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.